



**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**  
**SECRETARIA DA INDÚSTRIA, COMÉRCIO, CIÊNCIA E TECNOLOGIA**  
**AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO**

**DEFINIÇÃO PRELIMINAR DO PROJETO DE UM REATOR NUCLEAR DE  
PESQUISA E PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS, UTILIZANDO URÂNIO  
NATURAL E ÁGUA PESADA**

Jorge Isaias Lhagostera Beltrán

Dissertação apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares como parte dos requisitos para obtenção do Grau de "Mestre - Área de Reactores Nucleares de Potência e Tecnologia do Combustível Nuclear"

Orientador: Dr. Roberto Yoshlyuti Hukal

**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**

**SECRETARIA DA INDUSTRIA, COMÉRCIO CIÊNCIA E TECNOLOGIA  
AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO**

**DEFINIÇÃO PRELIMINAR DO PROJETO DE UM REATOR NUCLEAR  
DE PESQUISA E PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS,  
UTILIZANDO URÂNIO NATURAL E ÁGUA PESADA**

**Jorge Isaias Liegostera Beltrán**

Dissertação apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares como parte dos requisitos para obtenção do grau de Mestre – Área de Reactores Nucleares de Potência e Tecnologia do Combustível Nuclear

**Orientador Dr. Roberto Yoshiyuki Nakai**



**SÃO PAULO**

1982

LCS117.11

Aos funcionários do Instituto de  
Pesquisas Energéticas e Nucleares

#### AGRADECIMENTOS

- Ao orientador deste trabalho, Dr Roberto Yoshiyuti Hukai, com admiração e amizade
- Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, na pessoa do Sr Superintendente Hernani Augusto Lopes de Amorim e do Dr Rômulo Ribeiro Pieroni, ex-Superintendente
- À Comissão Nacional de Energia Nuclear, na pessoa do Eng<sup>o</sup> José Maria Vasconcellos da Silva, Diretor da Divisão de Materiais Nucleares
- Aos colegas do Centro de Processamento de Dados (I P E N )
- Aos colegas da Divisão de Informação e Documentação Científicas (I P E N )
- Aos companheiros do Centro de Engenharia Nuclear (I P E N)
- À Srta Creusa Moreira Diniz
- Aos Srs Ladislau Olah, Edison Ramalho e Nivaldo Isolani

DEFINIÇÃO PRELIMINAR DO PROJETO DE UM REATOR NUCLEAR  
DE PESQUISA E PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS, UTILIZANDO  
URÂNIO NATURAL E ÁGUA PESADA

Jorge Isaias Llagostera Beltrán

RESUMO

Foi realizado um estudo sobre a evolução das importações brasileiras de radioisótopos desde o início dos anos setenta, já que os mesmos vem tendo utilização crescente no País

Frente à limitada capacidade de produção de isótopos radioativos, atualmente existente no Brasil, foi definido um tipo de reator nuclear (urânio natural e água pesada) de pesquisa e produção de radioisótopos, o qual, além de suprir, ao menos parcialmente, as necessidades brasileiras desses isótopos, permita grande participação nacional no seu projeto, construção e manutenção em operação

Analisaram-se os processos de produção de água pesada e verificou-se qual a melhor alternativa para a produção da mesma, em pequena escala, no Brasil

Foram justificadas as escolhas relativas à definição dos principais constituintes do reator e foram determinadas, de modo preliminar, suas características mais importantes em relação aos aspectos neutrônicos e térmicos, e definidos seus parâmetros mais significativos

Estimaram-se as quantidades anuais, em termos de atividade total e específica, de radioisótopos, que poderiam ser obtidos por meio do reator proposto, os quais, atualmente, vem tendo grande participação no conjunto das importações brasileiras de isótopos radioativos

INSTITUTO DE PESQUISA E DESENVOLVIMENTO  
EM CIÊNCIAS NUCLEARES

PRELIMINARY DEFINITION OF THE DESIGN OF A NUCLEAR REACTOR  
FOR RESEARCH AND RADIOISOTOPE PRODUCTION USING NATURAL  
URANIUM AND HEAVY WATER

Jorge Isaias Llagostera Beltrán

ABSTRACT

A study was conducted about the evolution of the Brazilian importations of radioisotopes, from the beginning of the 70's since they have been increasingly used in the Country

In view of the limited production capacity of radioactive isotopes now existing in Brazil, a nuclear reactor type (natural uranium and heavy water) was defined, for research and production of radioisotopes, which, besides providing, at least partially, the Brazilian needs of said isotopes, permits a large national participation in its project, construction and operating maintenance

The processes for heavy water production have been analyzed and it could be detected what is the best alternative for the production thereof, in low scale, in Brazil

The options concerning the definition of the main components of the reactor were justified and its most important features were determined, in relation to the neutronic and thermal aspects, being so defined its most significant parameters

The annual quantities were estimated, in terms of total and specific activity, for the radioisotopes that could be obtained by means of the proposed reactor, which, by now, are participating, to a large extent, in the total of Brazilian importation of radioactive isotopes

## ÍNDICE

	Pag
1 INTRODUÇÃO	1
1 1 Objetivos e Definição do Trabalho	1
1 2 A Situação dos Radioisótopos no Brasil	3
1 2 1 A Importância dos Radioisótopos	3
1 2 2 Produção e Consumo de Radioisótopos no Brasil	5
1 3 Reatores Nucleares e Produção de Radioisótopos	13
2 MATERIAIS E COMPONENTES DO REATOR	18
2 1 Introdução	18
2 2 Combustível Nuclear	19
2 2 1 Propriedades Físicas e Mecânicas	20
2 2 2 Efeitos da Irradiação	25
2 2 3 Corrosão	27
2 2 4 Ligas de Urânio	28
2 2 5 Fabricação	28
2 3 Moderador	29
2 3 1 A Escolha da Água Pesada	31
2 3 2 Decomposição da Água pela Radiação	32
2 3 3 Produção de Água Pesada	33
2 3 3 1 Destilação do Hidrogênio Líquido	36
2 3 3 2 Destilação da Água	39
2 3 3 3 Eletrólise da Água	44
2 3 3 4 Reações de Intercâmbio	46

	Pág
2 3 4 Produção de Água Pesada no Brasil	55
2 4 Encamisamento do Combustível	63
2 4 1. Propriedades Físicas e Mecânicas do Alumínio	64
2 4 2 Corrosão	64
2 4 3 Compatibilidade entre o Alumínio e o Urânio	68
2 5 Refrigerante	68
2 6 Componentes	71
2 6 1 O Elemento Combustível	71
2 6 2 Barras de Controle	74
3 PARÂMETROS DO PROJETO NEUTRÔNICO E TERMOHIDRÁULICO	78
3 1 Célula Unitária	78
3 2 O Formato do Elemento Combustível	78
3 3 Determinação das Dimensões da Célula Unitária	80
3 4 Efeitos da Temperatura	87
3 5 Efeitos da Queima do Combustível	90
3 6 Geometria do Reator	90
3 7 Dimensões do Refletor	93
3 8 Distribuição de Temperaturas	99
3 8 1 Distribuição de Temperaturas no Refrigerante	99
3 8.2 Distribuição de Temperaturas na Superfície do Encamisamento	100
3 8 3 Distribuição de Temperaturas na Superfície do Combustível	102
3 8 4 Distribuição de Temperaturas no Centro do Combustível	102



	Pág
3 8 5 Cálculo das Distribuições de Temperatura	103
3 9 Perda de Carga	109
4 PRODUÇÃO DE FONTES RADIOATIVAS	114
4 1 Introdução	114
4 2 Produção de Cobalto-60	114
4 3 Produção de Irídio-192	122
4 4 Capacidade de Produção de Fontes Radioativas	128
4 4 1 Atividade Total e Específica de Cobalto-60	129
4 4 2 Atividade Total e Específica de Irídio-192	130
5 CONCLUSÃO E RECOMENDAÇÕES	134
6 APÊNDICE	141
6 1 Aplicações de Radioisótopos	141
6 2 Produção de Radioisótopos	141
6 3 Distribuição de Fluxo Neutrônico Rápido	141
6 4 Programas de Computação Utilizados	141
6 4 1 O Programa HAMMER	142
6 4 2 O Programa CITATION	143
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	154

## 1 INTRODUÇÃO

### 1.1 Objetivos e Definição do Trabalho

Desde o início dos anos setenta verificou-se um intenso crescimento da utilização de isótopos radioativos no Brasil, seja no campo da medicina, seja na indústria, na agricultura e na pesquisa, seguindo a tendência internacional de desenvolvimento de suas aplicações. A partir do momento em que os isótopos radioativos tornaram-se disponíveis no mercado internacional, foi incessante o crescimento de sua utilização em diversos campos, visando a substituição com vantagens técnicas e econômicas de outros processos, e em aplicações nas quais somente os radioisótopos são realmente eficazes.

Impunha-se portanto o estudo da evolução da utilização dos radioisótopos no Brasil, nestes últimos anos, a fim de compreender com mais clareza as implicações desse crescimento e as áreas mais beneficiadas por esse incremento. Era também importante verificar as dimensões das importações de radioisótopos comparadas à produção nacional.

Logo no início do trabalho de levantamento desses dados ficou claro que o crescimento das importações de isótopos radioativos era bastante acelerado e que a capacidade de produção instalada no País limita-se, basicamente, à proporcionada pelo reator IEAR-1, do I P E N (Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares), sem previsões quanto a instalação de outros reatores que pudessem ampliar a capacidade nacional de produção.

Em função desse quadro, pensou-se na possibilidade

da construção no País de um reator nuclear de pesquisa e produção de radioisótopos, o qual, além de suprir ao menos parcialmente, as necessidades brasileiras nesse setor, permitisse uma grande participação nacional no seu projeto e construção, representando uma valiosa experiência tanto para a indústria instalada no País como, principalmente, para os institutos de pesquisas nucleares brasileiros

A partir dessas condições de contorno, procurou-se definir um tipo de reator nuclear que, exigindo investimentos compatíveis com a capacidade econômica e financeira do País, pudesse ser construído com a maior independência possível em relação aos países detentores de tecnologias nucleares mais avançadas, quanto ao projeto, construção e manutenção em operação do reator

Nesse sentido, o tipo de reator foi determinado basicamente pela condição de se utilizar o urânio natural como combustível, em virtude do Brasil ter plenas condições de produzir o urânio natural metálico necessário, dispensando o uso de urânio enriquecido, e, livrando-se, portanto, de injunções políticas adversas, decorrentes das oscilações da conjuntura internacional, quanto à construção e manutenção desse reator

Por outro lado, dada a necessidade de um fluxo neutrônico relativamente elevado para a irradiação de materiais no reator, o moderador escolhido foi a água pesada. Nessa definição não foi esquecido que a produção de água pesada apresenta alguns problemas de ordem técnica e econômica de certa complexidade, os quais no entanto são de resolução bem mais simples e menos custosa do que o enriquecimento do urânio

Em função do problema que representa para o Brasil a produção de água pesada, julgou-se importante analisar os

processos mais significativos existentes para a produção da mesma, e verificar qual deles apresentaria maiores perspectivas concretas e menores dificuldades tecnológicas e econômicas para a produção no País, da água pesada em quantidades suficientes, ao menos, para a realização do projeto proposto

Uma vez justificadas as decisões quanto à definição do reator em termos dos seus constituintes principais, procurou-se determinar, de forma preliminar, suas características mais importantes em relação aos aspectos neutrônicos e térmicos e definir seus parâmetros mais significativos

Além disso, estimou-se as quantidades anuais, em termos de atividades totais e específicas, dos isótopos radioativos - que vem sendo importados em maior quantidade -, que poderiam ser obtidas por meio do reator nuclear proposto

Finalmente, são apresentadas algumas conclusões e recomendações que foram julgadas importantes para os estudos posteriores, mais aprofundados, que porventura venham a ser realizados sobre o assunto

## 1 2 A Situação dos Radioisótopos no Brasil

### 1 2 1 A Importância dos Radioisótopos

Desde que o Laboratório Nacional de Oak Ridge, nos Estados Unidos da América, em junho de 1946, anunciou a disponibilidade de isótopos radioativos para venda no mercado, o seu uso difundiu-se muito, contribuindo sobremaneira para o progresso de vários campos da ciência e da técnica

A importância atual dos radioisótopos pode ser avaliada pelo seu grande número de aplicações

- Na medicina, destacam-se o uso terapêutico das radiações ionizantes, a fabricação de produtos radiofarmacêuticos utilizados como traçadores em diagnósticos e a esterilização de produtos médicos /23, 35, 66, 67 /

- Na indústria, a gamagrafia, a radiografia com nêutrons, a medição de espessura de chapas de aço e outros materiais, a medição de densidade, umidade, nível de líquidos, o seu uso como fontes de energia térmica e luminosa, instrumentos para controle da qualidade e dos processos em geral/26,33, 45 /

- Na agricultura, os traçadores para estudo da assimilação de nutrientes, irradiação de sementes para obter mutações que aumentem a produtividade, a resistência a pragas e as qualidades protéicas, e a irradiação de alimentos para esterilização e conservação /12, 13, 53, 62 /

- Em hidrologia, na determinação de reservas subterâneas em regiões áridas e medição de vazões em canais de todos os tipos / 57 /

- Em pesquisa, sua aplicação é muito diversificada e numerosa, destacando-se os progressos obtidos no estudo de processos biológicos e químicos. Nas publicações da Agência Internacional de Energia Atômica, AIEA, e em periódicos como o "International Journal of Applied Radiation and Isotopes", "Isotopes Radiation and Technology", e "Radiation Physics and Chemistry", encontram-se inúmeros exemplos de aplicações em pesquisa

A importância econômica dos radioisótopos é inquestionável apenas em redução de custos de produção, devido a sua aplicação industrial, os países avançados economizam centenas de milhões de dólares, há vários anos / 33 /

## 1 2 2 Produção e Consumo de Radioisótopos no Brasil

→ Com a criticalidade do reator IEAR-1 em setembro de 1957, abriram-se as perspectivas para a produção de radioisótopos no Brasil. A partir de 1961, procurou-se estabelecer uma produção rotineira do isótopo I-131, na época o isótopo de maior demanda. Em 1963, desenvolveu-se, com cooperação francesa, a produção de ouro coloidal radioativo. Ao mesmo tempo, foram feitas experiências para produção do isótopo P-32, procurando atender a demanda da Escola Superior de Agricultura Luiz de Queiroz.

Em 1964, iniciou-se a preparação de Cr-51, pelo processo Szilard-Chalmers, bem como a de Na-24 e K-42, além do Br-82 e do S-35. Além disso, iniciou-se a formação de um grupo de marcação de compostos visando a fabricação de produtos radiofarmacêuticos.

A partir de 1963, foram iniciados estudos para a produção de fontes radioativas para uso em gamagrafia industrial, de Tl-170, Eu-152/154, Ir-192 e Co-60. Em 1970, passaram a ser ativadas agulhas de cobalto para uso terapêutico. Na Figura 1.1 podemos observar a atividade total das amostras irradiadas no reator IEAR-1, a partir de 1962 /64/.

A demanda brasileira de radioisótopos tem aumentado vigorosamente nos últimos anos. Hoje, são muitas as indústrias e instituições médicas que empregam materiais radioativos. Diversos centros de pesquisas têm estudado a sua utilização além do I P E N, o Instituto de Engenharia Nuclear, no Rio de Janeiro, o antigo Instituto de Pesquisas Radioativas, o Centro de Energia Nuclear na Agricultura, assinando acordos de cooperação com a A I E A.

O Departamento de Pesquisa Científica e Tecnológica da Comissão Nacional de Energia Nuclear, CNEN, tem con-

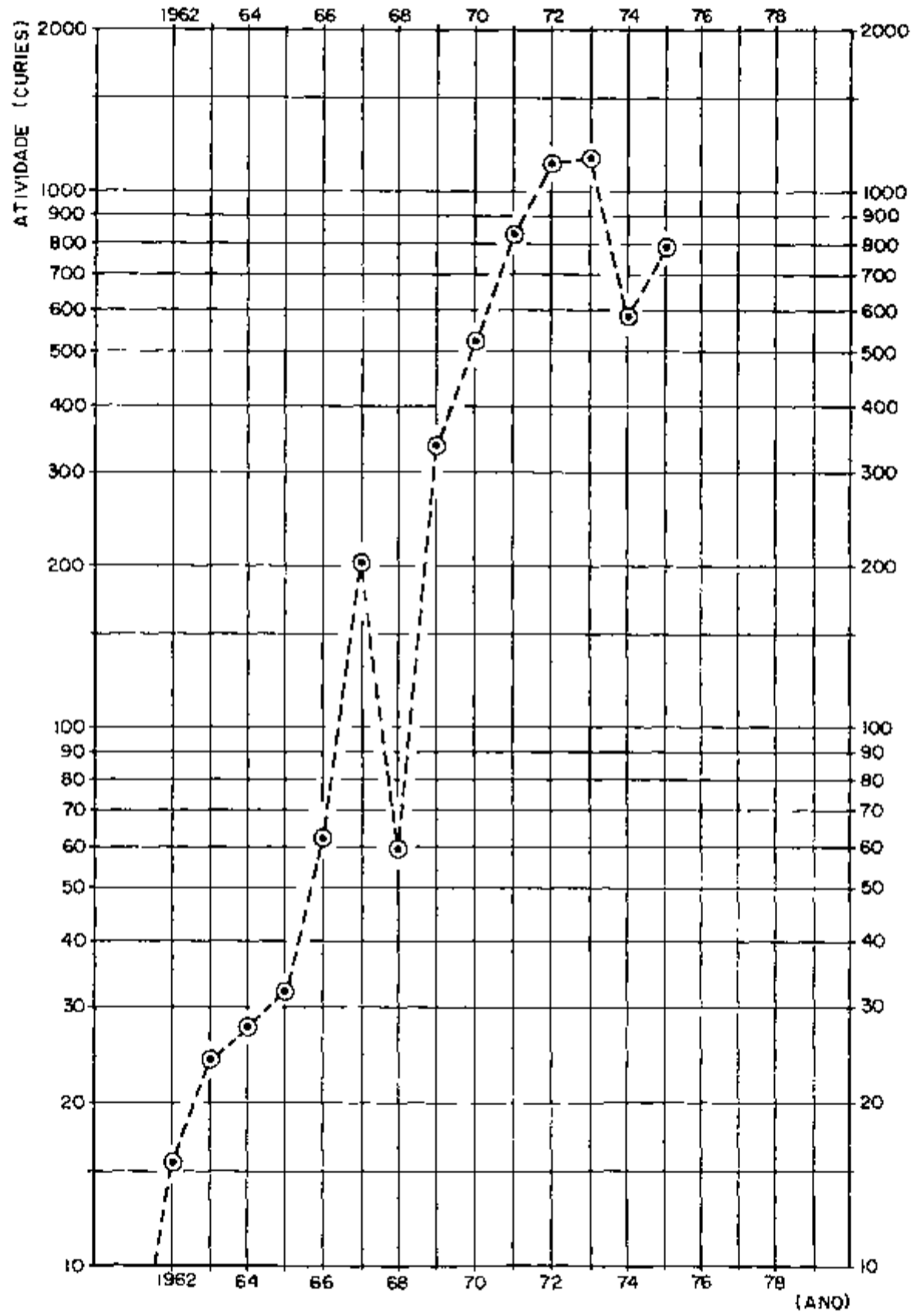


FIGURA 11 ATIVIDADE DAS AMOSTRAS IRRADIADAS NO REATOR IEAR-1 (IPEN)

INSTITUTO DE PESQUISAS NUCLEARES

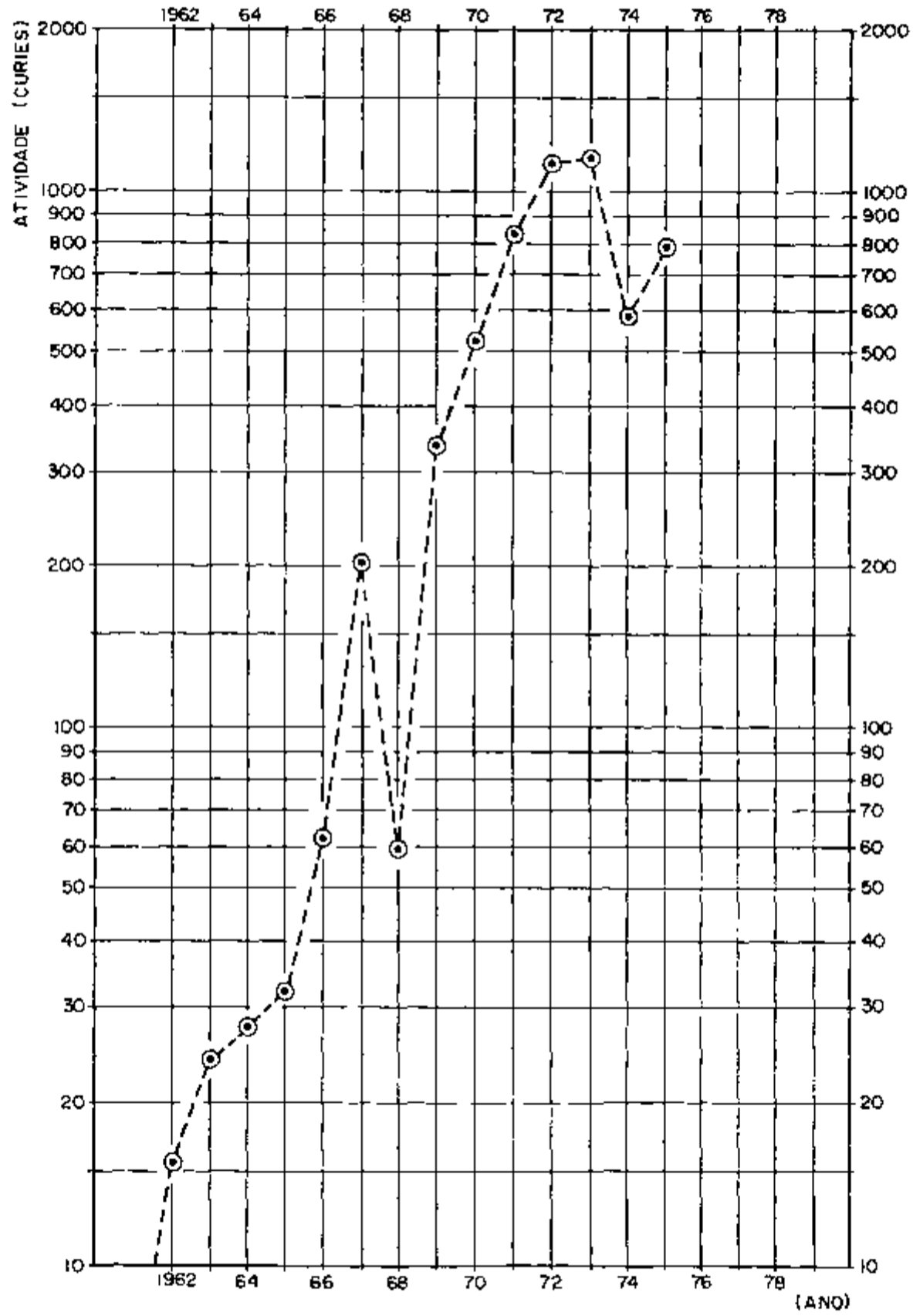


FIGURA 11 ATIVIDADE DAS AMOSTRAS IRRADIADAS NO REATOR IEAR-1 (IPEN)

INSTITUTO DE FÍSICA  
UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO



cedido inúmeras subvenções a órgãos científicos como Institutos de Física e Institutos Biológicos para aquisição de radioisótopos. No campo médico, há colaboração com Institutos de Biofísica e Faculdades de Medicina. Quanto à irradiação de alimentos, há vários laboratórios desenvolvendo trabalhos nesse setor de atividades. Laboratório Bromatológico do Instituto de Saúde Pública (RJ), Escola de Veterinária do Exército, Centro de Tecnologia Agrícola e Alimentar, Instituto de Nutrição Annes Dias, Grupo de Preservação e Irradiação da CNEN, e muitos outros / 7 /

Em dezembro de 1981, o total de entidades usuárias de isótopos radioativos, registradas na CNEN, era de 1657, quando em junho de 1979 esse total era de 1366, em 1974 era de 571 e em 1969 apenas 36. Estes dados atestam o intenso crescimento da utilização de radioisótopos nos últimos anos.

Por meio da Tabela 1.1 pode-se constatar que a maior parte das entidades que utilizam radioisótopos atua no campo médico, sendo o segundo grupo composto por aquelas que se dedicam a atividades industriais.

Apesar da evolução da produção de isótopos radioativos no I P E N, o qual vem inclusive produzindo Tecnécio-99m em quantidade significativa, a demanda de radioisótopos tem aumentado bastante, fazendo com que o Brasil tenha de importar, atualmente, mais de 95% dos radioisótopos utilizados no País. É apresentada na Tabela 1.2 a pauta de importações correspondente às 2005 autorizações expedidas pela CNEN em 1976.

Ao longo dos últimos doze anos, o incremento anual médio da atividade importada foi de cerca de 40%.

TABELA 1.1 - ENTIDADES DE TODO O PAÍS REGISTRADAS NA C N E N  
PARA UTILIZAÇÃO DE RADIOISÓTOPOS, SEGUNDO O SEU  
CAMPO DE ATUAÇÃO, ATÉ DEZEMBRO DE 1981

Campo de Atuação		Número de Entidades		Participação no total	Observações
Medicina	A	190	1071	64,6%	A in vivo
	B	673			B in vitro
	C	208			C radioterapia
Indústria	D	147	341	20,6%	D gamagrafia
	E	194			E medidores
Pesquisa		173		10,4%	
Comércio		72		4,4%	
Total		1657		100%	

TABELA 1 2 - RADIOISÓTOPOS CUJA IMPORTAÇÃO FOI AUTORIZADA PELA  
CNEN DE 01/01 A 16/11 DE 1976

Radioisótopos	Atividade (Ci)	Radioisótopos	Atividade (Ci)
Co-60	505819,896	H-3	1,243
Ir-192	11762,350	Cr-51	0,762
Tc-99	143,000	Sr-90	0,481
Am-241	51,976	Xe-133	0,300
Cs-137	47,922	Ra-226	0,153
I -131	20,737	Co-57	0,151
Kr-85	20,140	Sr-85	0,147
I-125	12,856	Se-75	0,066
In-113	4,425	C -14	0,053
Po-210	2,186	Fe-59	0,032
Hg-203	1,915	Ca-45	0,030
Atividade Total Importada		517890,82 Ci	

atingindo valores da ordem de 500 000 Ci por ano. Da mesma forma, o valor das importações, em dólares tem aumentado aproximadamente 39% ao ano, atingindo valores da ordem de 7 milhões de dólares. As Figuras 1.2 e 1.3 apresentam, graficamente, a evolução da atividade e do valor dos radioisótopos importados pelo Brasil no período estudado / 8 /

A partir das elevadas taxas de crescimento da utilização de radioisótopos, verificadas, conclui-se que a demanda reprimida é bastante grande, o que é plenamente compreensível, pois sua introdução em diversos campos de atividades implica em redução de custos e no uso de técnicas mais convenientes e eficazes. Apesar das dificuldades econômicas enfrentadas pelo País, particularmente em 1981, é razoável supor, que a utilização de radioisótopos continuará experimentando um incremento apreciável, mais ou menos compatível, com o desenvolvimento da economia nacional.

Por meio da distribuição das entidades usuárias de radioisótopos pelo território nacional, apresentada na Tabela 1.3, pode-se confirmar a grande correlação existente entre o grau de industrialização e o uso dos isótopos radioativos em todos os campos, expandindo-se sua aplicação médica, industrial, agrícola e na pesquisa científica e tecnológica.

TABELA 1.3- DISTRIBUIÇÃO REGIONAL DAS ENTIDADES USUÁRIAS DE RADIOISÓTOPOS REGISTRADAS NA C N E N, ATÉ DEZEMBRO DE 1981

Região	Sudeste	Sul	Nordeste	Centro-Oeste	Norte	Total
número de Entidades usuárias	1159	230	167	69	32	1657
Participação no total (%)	69,9	13,9	10,1	4,2	1,9	100

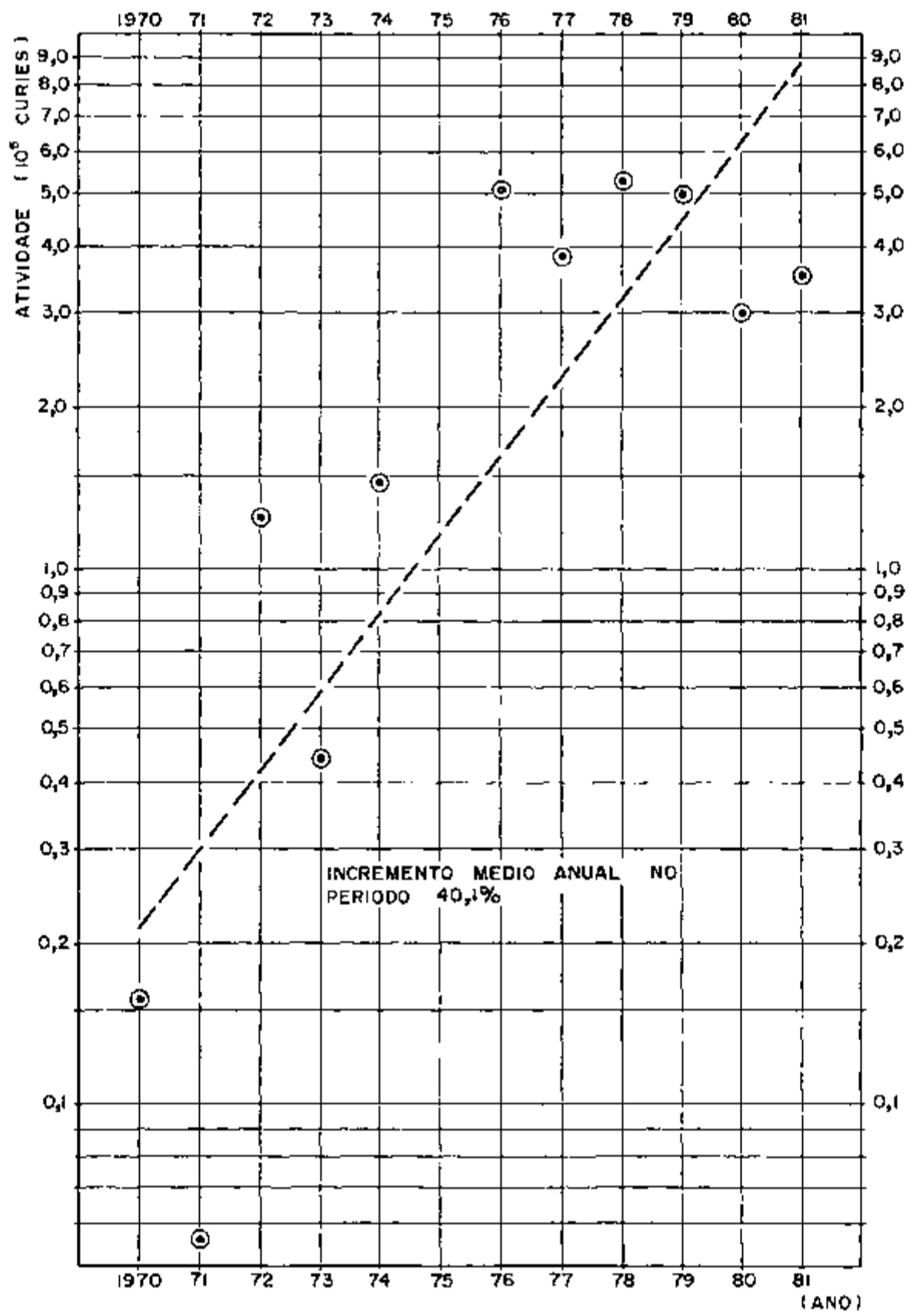


FIGURA 12 ATIVIDADE DOS RADIOISOTOPOS IMPORTADOS PELO BRASIL (CNEN)

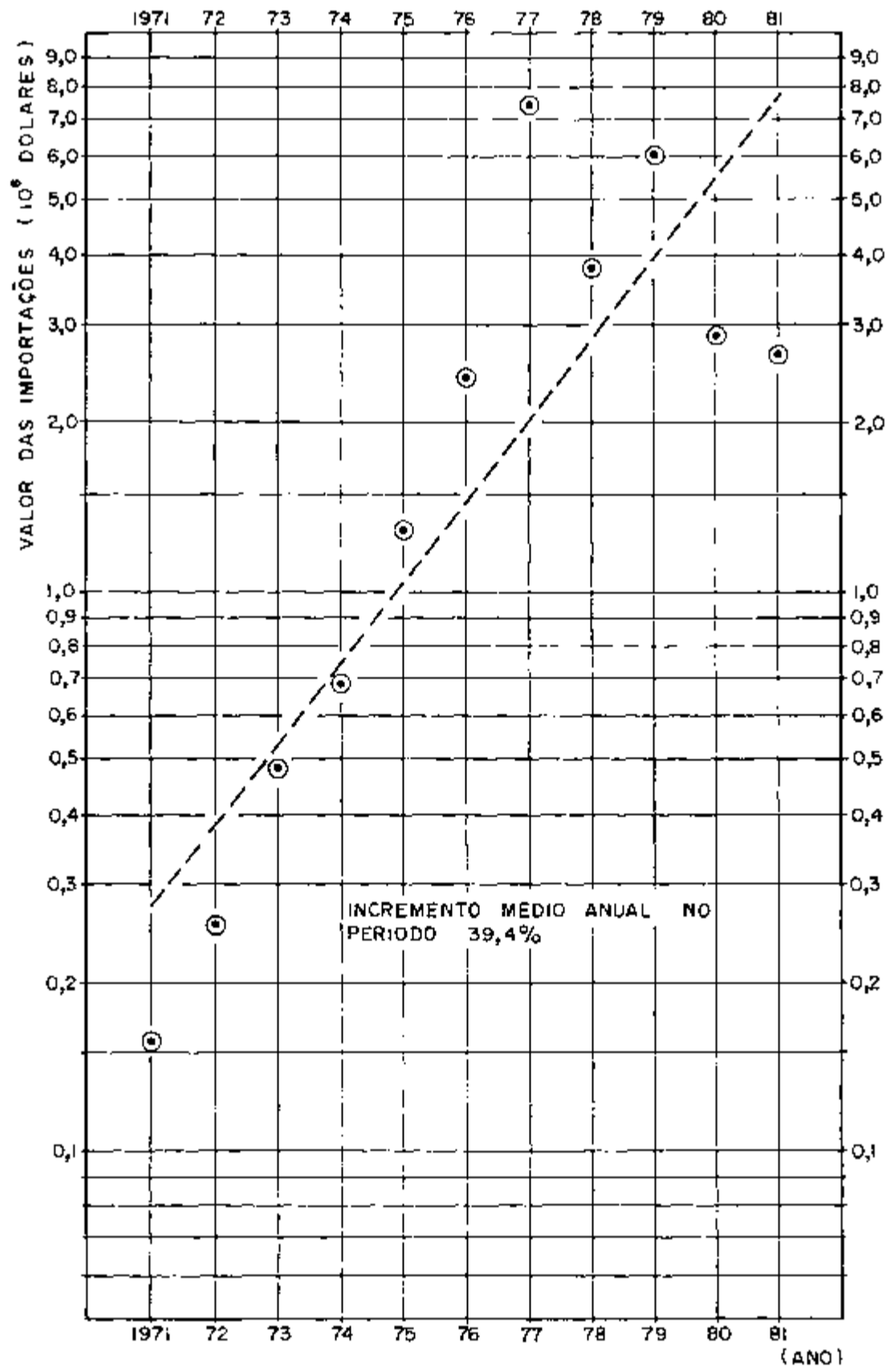


FIGURA 13 VALOR DAS IMPORTAÇÕES BRASILEIRAS DE RADIOISOTOPOS (CACEX)

Além desse aspecto, é importante verificar quais são os isótopos radioativos responsáveis pela maior parte das importações, principalmente em relação à atividade total, já que esses radioisótopos é que teriam o maior peso na determinação das necessidades de irradiação, para o dimensionamento de instalações que venham a ser projetadas visando a produção nacional desses radioisótopos

Analisando os dados disponíveis da CNEN sobre as importações brasileiras de radioisótopos dos últimos anos foi possível determinar, em termos de atividade total, quais os radioisótopos que tiveram maior demanda. Por meio dessas informações foi construída a Tabela 1 4, na qual figuram as participações percentuais do Co-60 e Ir-192, as quais, somadas, representam mais de 99% do total da importação

TABELA 1 4- PARTICIPAÇÃO, EM ATIVIDADE, DO Co-60 E Ir-192 NAS IMPORTAÇÕES DE RADIOISÓTOPOS

Ano	1972	1973	1974	1976	1977	1979	1980	1981
Co-60 (%)	97,35	43,84	89,78	97,67	94,98	91,89	85,09	90,92
Ir-192 (%)	1,99	56,02	9,63	2,27	4,89	8,10	14,16	8,59
Soma (%)	99,34	99,86	99,41	99,94	99,87	99,99	99,25	99,51

### 1 3 Reatores Nucleares e Produção de Radioisótopos

Como foi apresentado no item anterior, a importação de radioisótopos vem crescendo rapidamente no Brasil. A partir dessa constatação justifica-se o interesse em relação a possíveis alternativas a serem adotadas visando a produção no Brasil de isótopos radioativos em maiores quantidades

Os radioisótopos, em geral, podem ser produzidos de várias maneiras. A primeira consiste na ativação de núclídeos estáveis em reatores nucleares ou por meio de aceleradores de partículas, como o ciclotron. A segunda baseia-se na fissão induzida, com os produtos de fissão sendo produzidos, seja deliberadamente, seja como subprodutos, e a terceira por meio de fissão espontânea.

O processo mais importante, pela grande variedade de isótopos que podem ser produzidos, é a ativação de materiais, principalmente em reatores nucleares e também por meio de aceleradores de partículas.

Os aceleradores de partículas são bastante versáteis, possibilitam uma grande variedade de reações, e desempenham um papel importante na produção de radioisótopos, também, devido ao fato de que muitos dos radioisótopos são deficientes em nêutrons, o que não é facilmente obtido por meio de reatores nucleares. No entanto, os reatores nucleares são responsáveis pela produção da maior parte de radioisótopos utilizados, basicamente em virtude da maior simplicidade dos métodos e equipamentos envolvidos.

Particularmente para o Brasil, a instalação de aceleradores para a produção de radioisótopos seria bastante interessante, mas não dispensaria a utilização de reatores nucleares para esse fim, pois vários radioisótopos de intenso uso são obtidos mais facilmente, e até exclusivamente, por meio de reatores / 56 /

Além disso, os aceleradores são equipamentos bastante sofisticados, para cuja fabricação o País não está ainda suficientemente capacitado, o que obrigaria a sua importação, envolvendo quantias significativas.



Em função dessas considerações, julga-se como prioritária a utilização de reatores nucleares para incrementar a produção de isótopos radioativos no Brasil.

Os reatores nucleares mais apropriados para a produção de isótopos radioativos por ativação de isótopos estáveis são os que dispõem de elevados fluxos neutrônicos térmicos e espaço para irradiação de materiais. O reator MTR ("Materials Testing Reactor"), localizado em Idaho, E U A , o qual atingiu a criticalidade em 1952, sendo desativado em 1970, foi o primeiro reator de pesquisa essencialmente projetado para a irradiação de materiais e produção de radioisótopos. Dispondo de um fluxo térmico máximo de  $1 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup> s, com uma potência de 40MW, o MTR serviu como base para a concepção de vários outros reatores nucleares de características mais avançadas mas similares, como o reator ORR ( Oak Ridge, EUA, 1958), o reator R-2 (Studsvik, Suécia, 1960) , o reator SM-2 (Dimitrovgrad, URSS, 1961), o reator Pegase (Cadarache, França, 1963), o reator JMTR (Osaka, Japão, 1968), por exemplo. Todos esses reatores, como o MTR, do tipo tanque, refrigerados e moderados por água leve e utilizando como combustível urânio enriquecido a 90% , no mínimo. A potência desses reatores é no mínimo 30 MW e o fluxo térmico máximo é superior a  $1 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup> s /14, 16, 18,19/

Na Grã-Bretanha, os reatores DIDO e PLUTO ( Harwell, 1956 e 1957), também do tipo tanque, e utilizando urânio enriquecido a 93% , e dispondo de fluxos da ordem de  $2 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup> s, com uma potência de 22,5MW foram, no entanto, projetados para utilização de água pesada como moderador. Do mesmo tipo são os reatores JRR-2 ( Tokai, Japão, 1960), o reator DR-3 (Risø, Dinamarca, 1960), com potência de 10MW e fluxo máximo superior a  $1,5 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup> s. Também, do mesmo tipo é o reator HIGH FLUX REACTOR (Grenoble, França, 1971) de 60 MW e fluxo máximo de  $1,5 \times 10^{15}$  n/cm<sup>2</sup> s /14, 17, 19, 20/

Para o Brasil, todavia, a utilização de urânio enriquecido apresenta dificuldades apreciáveis, basicamente de ordem técnica e política, e nesse sentido, procurou-se averiguar as características de reatores, que no exterior, foram utilizados para pesquisa e produção de radioisótopos, operando com urânio natural como combustível.

Entre esses reatores, em termos de fluxo neutrônico, os moderados a água pesada são os únicos capazes de fornecer fluxos suficientes para a produção de radioisótopos em quantidades mais ou menos elevadas.

Os primeiros reatores de pesquisa de potência elevada, a urânio natural e água pesada foram construídos em Chalk River, no Canadá, inscritos no programa atômico canadense para o desenvolvimento dos reatores CANDU. O reator NRX (1947), com uma potência de 33MW, dispunha de um fluxo neutrônico máximo de  $6,4 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup> s, enquanto o reator NRU (1957), com uma potência de 110MW, dispunha de  $2,5 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup> s.

Em Trombay, na Índia, foi construído um reator semelhante aos canadenses (CIRUS, 1960) com 40MW e fluxo máximo de  $6,3 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup> s. Posteriormente, em Tokai, no Japão foi construído o reator JRR-3 (1962), com uma potência de 10MW e fluxo máximo de  $2,2 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup> s. Na Alemanha, em Karlsruhe, foi construído e depois ampliado, o reator FR-2 (1961/66) com potência de 44MW e fluxo máximo de  $1 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup> s / 14, 15, 17/

Esses reatores tem sido utilizados, graças ao fluxo neutrônico relativamente elevado e a disponibilidade de espaço para irradiação, para a produção de isótopos radioativos aliada à pesquisa nuclear em geral /32,61,70/

Esse tipo de reator nuclear, a urânio natural e com água pesada como moderador, é considerado neste trabalho como o mais apropriado para aplicação no Brasil com o objetivo de incrementar de forma significativa a produção local de isótopos radioativos, além de possibilitar o incremento das pesquisas nucleares no País

Nos Capítulos seguintes deste trabalho são apresentadas as características principais dos materiais utilizados e justificadas as escolhas efetuadas. Além disso, são definidos e apresentados os resultados dos cálculos dos principais parâmetros de projeto neutrônico e térmico do reator e estimadas as quantidades de cobalto-60 e irídio-192, os quais constituem mais de 99% da atividade total importada pelo Brasil, que poderiam ser obtidas com o reator proposto. Finalizando o trabalho, são apresentadas algumas conclusões e recomendações consideradas significativas para os estudos que venham a ser realizados sobre o tema

## 2 MATERIAIS E COMPONENTES DO REATOR

### 2.1 Introdução

A partir das considerações expostas no Capítulo anterior, o tipo de reator escolhido para a produção de radioisótopos em maior quantidade no Brasil, visando a diminuição das importações dos mesmos, é, basicamente, um reator tipo tanque, utilizando urânio metálico como combustível e moderado a água pesada.

A potência do reator foi estabelecida (ver item 3.6) em 20MW, baseando-se na experiência internacional e mais ou menos arbitrariamente em relação ao nível dos investimentos necessários. Essa potência possibilita a obtenção de um nível razoável de fluxo neutrônico térmico e espaço considerável para a irradiação de materiais.

Neste Capítulo são apresentadas as propriedades mais importantes dos materiais constituintes do reator e apresentadas as justificativas técnicas que fundamentam a sua escolha.

Além disso, em função da complexidade relativamente elevada da produção de água pesada no Brasil, deu-se um certo destaque aos vários processos de produção utilizados para sua produção e indicou-se o processo considerado mais viável, técnica e economicamente, para o País.

## 2 2- Combustível Nuclear

Para um reator deste tipo, é necessário um excedente razoável de reatividade, o que nos conduziria a combustíveis de urânio enriquecido. Contudo, a conjuntura política internacional, mormente a derivada a partir da política de não-proliferação nuclear do ex-Presidente Carter, dos Estados Unidos da América, é extremamente desfavorável à utilização do urânio enriquecido, em mais de 20%. Mesmo para enriquecimento de menor grau, as imposições políticas são muito negativas. Portanto, torna-se, senão compulsório, pelo menos conveniente, optar pelo uso de urânio natural, prescindindo da complexa etapa de enriquecimento. A menor reatividade seria parcialmente compensada pelo uso de um moderador pouco absorvedor de nêutrons.

O IPEN (Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares) possui as instalações necessárias para a produção de urânio natural, tanto em relação à purificação do urânio (CEQ - Centro de Engenharia Química), quanto à produção de urânio metálico (CMN - Centro de Metalurgia Nuclear).

Num reator produtor de radioisótopos, o objetivo não é a geração de energia térmica com a máxima eficiência possível, mas a obtenção de fluxos neutrônicos elevados. Dessa forma, não precisamos obter temperaturas de saída elevadas no refrigerante, podendo o reator trabalhar em temperaturas menores que 100°C. A potência específica de operação do combustível, também, não necessita ser elevada, e é definida principalmente pelo período de recarga determinado.

A máxima temperatura segura de operação do urânio metálico gira em torno de 550°C e a máxima potência específica em que o reator pode operar satisfatoriamente é de cerca de 6 MW/t.

Por outro lado, apesar de obter-se o máximo número de átomos de urânio por unidade de volume com o urânio metálico, as suas propriedades mecânicas e a sua grande suscetibilidade aos danos de irradiação limitam bastante o seu uso, principal -

mente em reatores de potência. Contudo, estas dificuldades podem ser contornadas satisfatoriamente pelo uso de inibidores de inchaço, o principal resultado dos danos de irradiação do urânio metálico.

### 2.2.1- Propriedades Físicas e Mecânicas

O urânio metálico ocorre em três fases alotrópicas. A fase alfa tem estrutura ortorômbica, a fase beta tem estrutura tetragonal com trinta átomos por célula unitária e a estrutura da fase gama é cúbica de corpo centrado. As propriedades características destas fases estão nas Tabelas 2.1 e 2.3.

O sistema ortorômbico, de baixa simetria, faz com que a fase alfa seja consideravelmente anisotrópica. A expansão térmica (Tabela 2.2) e o comportamento sob irradiação são bastante anisotrópicos, sofrendo os cristais, distorções consideráveis. Por isso, é interessante fabricar os elementos de forma a obter um material em que os grãos sejam pequenos e orientados aleatoriamente, o que favorece a isotropia do urânio.

A estrutura da fase alfa não é tipicamente metálica, assemelhando-se antes aos pseudo-metais (por exemplo telúrio). Isso explica o valor relativamente baixo de sua condutividade elétrica e de sua condutibilidade térmica (Tabela 2.5). A sua condutibilidade térmica aumenta um pouco com a temperatura, como também o seu calor específico (Tabela 2.4).

As propriedades mecânicas do urânio são sensivelmente dependentes de sua pureza, do tamanho dos grãos, de sua orientação, da temperatura, do grau de irradiação e do grau de ciclagem térmica. As propriedades elásticas do urânio em temperatura ambiente são dadas na Tabela 2.6 para três amostras tratadas diferentemente. A variação dos módulos de Young e Poisson com a temperatura pode ser vista na Tabela 2.7. O módulo de Poisson é baixo devido à natureza semi-plástica do urânio.

A dureza do urânio alfa diminui com a temperatura. O urânio beta é relativamente mais duro que o alfa em temperaturas acima de 400°C e o urânio gama é extremamente macio.

TABELA 2 1 - PROPRIEDADES DAS FORMAS CRISTALINAS DO URÂNIO METÁLICO

Propriedade	Fase ALFA	Fase BETA	Fase GAMA
Intervalo de estabilidade(°C)	até 665	de 665 a 770	de 770 a 1130(P F)
Forma cristalina	ortorômbica	tetragonal	cúbica de corpo centrado
Átomos por célula unitária	4	30	2
Dimensões da célula unitária( Å)	(25°C)	(720°C)	(850°C)
a <sub>0</sub>	2,854	10,76	3,524
b <sub>0</sub>	5,869	-	-
c <sub>0</sub>	4,95	5,656	-
Massa específica ( g/cm <sup>3</sup> )	19,04	18,11	18,06

TABELA 2 2 - COEFICIENTES MÉDIOS DE EXPANSÃO TÉRMICA DO URÂNIO  
FASE ALFA

Coeficiente Linear ( $10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ )			Coeficiente Volumétrico ( $10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ )	
Direção	de 0 a $300^\circ\text{C}$	de 0 a $600^\circ\text{C}$	de 0 a $300^\circ$	de 0 a $600^\circ\text{C}$
$a_0$ $\{100\}$	26,2	34,1	47,1	56,8
$b_0$ $\{010\}$	- 1,3	- 7,11		
$c_0$ $\{001\}$	22,2	29,6		

TABELA 2 3 - CALOR E ENTROPIA DE TRANSFORMAÇÃO DO URÂNIO METÁ-  
LICO

Transformação	Temperatura ( $^\circ\text{C}$ )	$\Delta H$ (kcal/mol)	$\Delta S$ (cal/mol K)
$\alpha \rightarrow \beta$	666	0,680 - 0,712	0,724 - 0,758
$\beta \rightarrow \gamma$	776	1,142 - 1,164	1,089 - 1,110
$\gamma \rightarrow$ Líquido	1132	4,7	3,3



TABELA 2 4 - CALOR ESPECÍFICO, ENTALPIA E ENTROPIA DO URÂNIO METÁLICO

Temperatura (°C)	$C_p$ (cal/mol°C )	$H_t$ (kcal/mol)	S (cal/mol K )
27	6,649	1,539	10,052
327	8,227	3,725	17,056
627	11,107	6,567	20,882

TABELA 2 5 - RESISTIVIDADE ELÉTRICA E CONDUTIBILIDADE TÉRMICA DO URÂNIO METÁLICO

Temperatura ( °C )	Resistividade elétrica ( $\mu \Omega$ cm )	Condutibilidade térmica ( W/cm°C )
27	30	0,270
300	50	0,310
600	59	0,380

TABELA 2 6- PROPRIEDADES ELÁSTICAS DO URÂNIO METÁLICO (25°C)

Propriedade	Processo / Tratamento		
	Fundido	Tratamento $\beta$	Laminado a quente
Módulo de elasticidade ( $10^3 \text{MPa}$ )	205	176 - 201	176
Módulo de cisalhamento ( $10^3 \text{MPa}$ )	83	83	70
Módulo de Poisson	0,23	0,19	0,20

TABELA 2 7- EFEITO DA TEMPERATURA SOBRE AS PROPRIEDADES ELÁSTICAS DO URÂNIO METÁLICO

Temperatura ( °C )	Módulo de Elasticidade ( $10^3 \text{MPa}$ )	Módulo de Poisson
25	186	0,20
100	182	0,20
200	172	0,22
300	161	0,24

Na Tabela 2 8 vemos alguns valores típicos de resistência à tração para quatro espécies submetidos a diversos tratamentos. Na Tabela 2 9 está representada a variação com a temperatura das propriedades de tração do urânio submetido a tratamento beta (de uso bastante frequente em reatores)

A resistência ao impacto do urânio tratado na fase beta pode ser aumentada pelo alívio de tensões na fase alfa, nos dois casos, a resistência ao impacto aumenta com a temperatura (cerca de quatro vezes para temperaturas de 0°C a 100°C). As propriedades de resistência à fadiga e ao escoamento ("Creep"), dependem bastante do grau de ciclagem térmica, sendo importante no desempenho do elemento combustível.

## 2 2 2- Efeitos da Irradiação

Os elementos combustíveis de urânio natural metálico sofrem mudanças dimensionais e de suas propriedades quando submetidos à irradiação. As mudanças dimensionais são devidas basicamente a dois fatores: instabilidade dimensional e inchação.

A instabilidade dimensional consiste na distorção dos cristais, com pouca variação na densidade do material e observada abaixo de 450°C. Quando irradiado, o cristal de estrutura ortorrômbica sofre uma contração considerável na direção (100) e uma expansão quase da mesma magnitude na direção (010). Uma forma de evitar orientações preferenciais e diminuir a instabilidade é efetuar o tratamento. Outras são a fabricação dos elementos por meio da metalurgia do pó e o emprego de elementos de liga.

Em altas temperaturas (acima de 450°C) o urânio metálico sofre inchação como efeito indireto da irradiação, devido à acumulação, em diversos locais, de produtos de fissão gasosos. Por meio de tratamentos metalúrgicos e a adição de elementos de liga, pode-se diminuir a inchação, providenciando-se espaços para a acumulação desses gases. Há também, outros fatores que levam à inchação: os produtos sólidos de fissão são menos densos que o urânio e para cada átomo fissionado são formados dois produtos de fissão. Até 300°C a inchação é pequena (2-3%) e

TABELA 2 8- PROPRIEDADES DE RESISTÊNCIA DO URÂNIO METÁLICO PARA  
ALGUNS PROCESSOS DE FABRICAÇÃO

Processo/tratamento	Tensão de escoamento 0,2% (MP <sub>a</sub> )	Resistência a tração (MP <sub>a</sub> )	Alongamento em 50 mm (%)
Fundido	207	448	5 - 10
Laminação α, 500°C	414	896	20
Alívio a 500°C	276	690	15
Tratamento β, com resfriamento em água	241	586	10 - 12

TABELA 2 9 - VARIAÇÃO DA RESISTÊNCIA DO URÂNIO ( TRATAMENTO β )  
COM A TEMPERATURA

Temperatura (°C)	Tensão de escoamento 0,2% (MP <sub>a</sub> )	Resistência a tração (MP <sub>a</sub> )	Alongamento em 50 mm (%)	Estricção (%)
- 45	276	634	5	6
25	241	586	10	12
100	214	524	28	21
200	179	400	31	34
300	152	290	32	40
400	117	193	33	50
500	83	110	34	60
600	48	55	34	72
β 700	41	62	35,5	85
γ 800	< 7	< 7	36	99

devida aos produtos de fissão sólidos

No Laboratório de Savannah River, por meio da adição de elementos de baixa solubilidade (centenas de ppm) obtiveram-se materiais de alto índice de desempenho, trabalhando em elevadas temperaturas e altas taxas de queima nuclear

Os efeitos da irradiação neutrônica nas propriedades mecânicas do urânio natural metálico, para baixos valores de queima são aumento da tensão de escoamento, diminuição da tensão de ruptura e diminuição extraordinária da ductilidade

### 2 2 3- Corrosão

Ainda que o urânio esteja separado do refrigerante por um revestimento protetor, a sua corrosão deve ser considerada, já que existe a possibilidade do revestimento ter defeitos ou romper-se durante a irradiação

O urânio reage com o ar, a água e o hidrogênio mesmo na temperatura ambiente. O ataque do urânio metálico pela água, com a produção de hidrogênio, é bastante severo. Inicialmente, forma-se uma fina película protetora de  $UO_2$  e pode-se observar um pequeno ganho de massa. O óxido formado destaca-se continuamente, com uma taxa mais ou menos constante de perda de massa, até verificar-se rachaduras e a consequente desintegração da amostra. O hidrogênio liberado na reação com a água desempenha um papel importante. O hidrogênio nascente difunde-se através da película de  $UO_2$  e reage com o metal, formando uma camada de hidreto entre o metal e o óxido, o que torna a película oxidada não aderente.

A taxa de corrosão varia muito com as condições a que está submetido o espécime. Por essa razão a análise quantitativa da corrosão do urânio metálico só pode ser realizada para casos bem especificados.

#### 2 2 4- Ligas de Urânio

Procura-se superar os principais problemas para a utilização do urânio metálico como combustível (a corrosão pela água e a instabilidade dimensional sob irradiação) pelo uso de certas ligas. Uma concepção importante é a dissolução de pequenas quantidades de metais como o cromo, molibdênio, nióbio ou zircônio no urânio, a fim de estabilizar a fase beta ou gama. Quando a transição para a fase alfa ocorre, o produto consiste de grãos pequenos e de orientação desordenada, tem maior estabilidade dimensional e é mais resistente à corrosão do que o urânio alfa comum, fundido. Apesar de serem essas ligas também atacadas pela água, a reação não é tão séria, no caso de falha do revestimento. Os elementos de liga (exceto o zircônio) têm seções de choque de captura consideráveis e, por isso, as adições devem ser pequenas.

As propriedades mecânicas também podem ser melhoradas com o uso de ligas e tratamentos térmicos apropriados.

#### 2 2 5- Fabricação

Os equipamentos utilizados para a produção do urânio não diferem muito dos empregados para materiais mais convencionais. A natureza tóxica, radioativa e pirofórica do urânio leva a algumas modificações, principalmente se o metal está em temperaturas muito elevadas ou finamente dividido, como na metalurgia do pó ou na usinagem. De forma geral, o urânio pode ser fundido, laminado, extrudado, forjado e usinado, ou produzido por meio da metalurgia do pó.

Devido à facilidade com que o urânio se oxida, especialmente em alta temperatura, ele deve ser protegido do ar durante a fabricação, seja por sais fundidos, seja por uma atmosfera inerte.

O tratamento térmico desempenha um papel importante, tanto durante a fabricação, para facilitar a usinagem, como durante a posterior irradiação, aumentando a estabilidade dimensional do elemento / 27, 30, 37, 44 /

### 2.3- Moderador

Sob o ponto de vista da neutrônica, os requisitos básicos para que um determinado material seja um bom moderador são número de massa pequeno, secção de choque de espalhamento de nêutrons razoavelmente alta e secção de choque de absorção baixa. Segundo esse critério, as substâncias que podem ser utilizadas como moderadores são a água comum, a água pesada, os hidrocarbonetos, o berílio (seja como metal, óxido ou carbeto) e a grafita.

No nosso caso, a economia de nêutrons é o fator mais importante a ser considerado, sendo a seleção do material fundamentada essencialmente em considerações nucleares. Para isso, os parâmetros empregados são  $\xi$  (decremento logarítmico médio de energia),  $\bar{\xi} \Sigma_s$  (poder de moderação) e  $\frac{\bar{\xi} \Sigma_s}{\Sigma_a}$  (razão de moderação).

Na Tabela 2.10 estão descritas as propriedades de espalhamento de diversos núcleos, onde  $\bar{n}$  é o número médio de colisões necessárias para a termalização de um nêutron (energia inicial de 2 MeV e energia final de 0,025 eV).

Como vemos, os núcleos de hidrogênio e deutério são os que possibilitam menor número de colisões para a termalização de um nêutron de fissão. Todavia, é interessante levar também em conta a probabilidade de ocorrência das colisões, dada por  $\bar{\xi} \Sigma_s$ , para a avaliação da eficiência de uma substância como moderador de nêutrons.

TABELA 2 10 -PROPRIEDADES DE ESPALHAMENTO NEUTRÔNICO DE ALGUNS NÚCLEOS

Núcleo	Número de massa	$\xi$	$\bar{n}$
Hidrogênio	1	1,00	18
Deutério	2	0,725	25
Hélio	4	0,425	43
Berílio	9	0,206	86
Carbono	12	0,158	114
Urânio	238	0,000838	2172

TABELA 2 11- PROPRIEDADES NUCLEARES DE ALGUNS MODERADORES

Moderador	Poder de Moderação ( $\xi \bar{\Sigma}_s$ (cm <sup>-1</sup> ) )	Razao de Moderação $\xi \bar{\Sigma}_s / \Sigma_a$
H <sub>2</sub> O	1,28	58
D <sub>2</sub> O	0,18	21000
Be	0,16	130
BeO	0,12	169
C	0,065	200



Constam da Tabela 2 11 o valor do poder de moderação de algumas substâncias, onde as secções de choque de espalhamento são assumidas como constantes para nêutrons de 1 a  $10^5$  eV

Quanto ao poder de moderação, a água leve assume uma vantagem nítida em relação a água pesada. Há, contudo, um aspecto importante sobre o qual o poder de moderação não fornece informação, que é a absorção de nêutrons pela substância moderadora. Sendo elevada em demasia, pode inutilizar a substância para uso como moderador, o que acontece, por exemplo, com o boro e o lítio. Esse problema é resolvido com a definição da Razão de Moderação que nos dá a relação entre o poder de moderação e a secção de choque de absorção (ou captura) da substância. Ainda na Tabela 2 11 é mostrado o valor da razão de moderação para as mesmas substâncias, onde os valores de  $\bar{\Sigma}_a$  foram tomados para nêutrons térmicos

### 2 3 1- A Escolha da Água Pesada

Como vimos acima, devido ao seu poder de moderação satisfatório e sua razão de moderação excepcionalmente elevada, seguida de longe pela grafita, a água pesada é um excelente material para moderação, em relação à economia de nêutrons

Em condições equivalentes, tanto a probabilidade de escape à ressonância como o fator de utilização térmica são superiores à da grafita. Em consequência, um reator heterogêneo tendo urânio natural metálico como combustível será fisicamente menor e necessitará de muito menos combustível se a água pesada for usada como moderador, e não a grafita

De fato, um sistema homogêneo de urânio natural e água pesada pode atingir criticalidade ( $K_{\infty}$  máximo = 1,03), enquanto que uma mistura homogênea de grafita e urânio natural não possibilita obter-se a criticalidade ( $K_{\infty}$  máximo = 0,85) / 27, 40, 41 /

### 2 3 2- Decomposição da Água pela Radiação

Já que a água pesada foi o moderador escolhido, é importante abordar os efeitos que sofre sob a ação de radiações nucleares. Como esta discussão aplica-se às três formas isotópicas da água,  $H_2O$ ,  $HDO$  e  $D_2O$ , nos referiremos à "água" ou "hidrogênio" de forma genérica.

Sob a ação de radiações nucleares, os gases hidrogênio e oxigênio são liberados e pode-se detectar peróxido de hidrogênio na fase aquosa. Estando a água num sistema fechado, a pressão desses gases aumenta até que é atingido o equilíbrio. A magnitude da pressão de equilíbrio depende da natureza da radiação, de sua densidade (fluxo), da temperatura e da presença de substâncias dissolvidas na água.

Em geral, a pressão de equilíbrio aumenta com o fluxo de radiação mas diminui com o aumento da temperatura. A presença de impurezas também causa um aumento da pressão de equilíbrio. A concentração de peróxido de hidrogênio na solução é diminuída pela elevação da temperatura e pela presença de impurezas.

Os nêutrons lentos não causam a decomposição direta da água. Na água pesada, a decomposição secundária devida aos nêutrons lentos é pequena, pois a seção de choque de captura do deutério é baixa. Dessa forma, os raios gama que são produzidos como resultado da captura radioativa e que podem decompor a água, verificam-se muito menos com a água pesada do que com a água leve.

A formação de trítio, nos sistemas que empregam a água pesada, deve ser levada em conta, já que a sua presença traz riscos de contaminação radioativa. O trítio tem uma meia-vida de cerca de 12 anos e é emissor de radiação  $\beta^-$  de 18 KeV, difundindo-se com muita facilidade.

O efeito dos nêutrons rápidos pode ser atribuído aos prótons de recuo altamente energéticos produzidos pela colisão dos nêutrons com os núcleos de hidrogênio.

As radiações ionizantes causam a formação de átomos de hidrogênio e radicais livres hidroxila. Subsequentemente o H e o OH podem recombinar-se formando novamente água, ou podem combinar-se em pares, formando hidrogênio e peróxido de hidrogênio.

Nos reatores em que a água é usada como moderador, refletor ou refrigerante, é oportuna a remoção ou recombinação dos gases formados, não só devido ao risco de explosão (nos reatores de pesquisa esse risco é pequeno), mas também para evitar a ação corrosiva do oxigênio dissolvido na água. A recombinação é frequentemente catalizada por platina finamente dividida.

Os sistemas de purificação da água são também importantes, já que auxiliam no controle da decomposição da água e na diminuição da atividade radioativa induzida nas impurezas pelas radiações nucleares / 27, 51 /

### 2.3.3- Produção de Água Pesada

Muitos processos têm sido propostos para a produção de água pesada, mas apenas alguns demonstraram perspectivas concretas de aproveitamento.

O primeiro processo utilizado para a separação do deutério foi a evaporação fracionada do hidrogênio, em 1932. Durante os anos seguintes a eletrólise da água, a destilação da água e a destilação do hidrogênio foram pesquisados como processos de separação de deutério. Durante a segunda guerra mundial, nos Estados Unidos da América e também na Alemanha, realizaram-se esforços significativos na avaliação e desenvolvimento de métodos de produção de água pesada. Definiram-se dois processos de intercâmbio químico como os mais viáveis: água-hidrogênio e água-hidrogênio-sulfeto. O primeiro foi a base para a produção inicial, a custos razoáveis e em escala industrial, da água pesada e o segundo, conhecido como processo GS (GIRDLER-SULFIDE), tornou-se a base para todas as usi-

nas de produção de água pesada em grande escala

Apesar do grande número de processos estudados apenas cinco processos foram utilizados até hoje para a produção industrial de água pesada, ver Tabela 2 12

O intercâmbio monotérmico água-vapor-hidrogênio, com o refluxo do hidrogênio enriquecido fornecido por eletrólise foi usado em Trail, no Canadá, e na Noruega, esta última ainda em operação. Atualmente há uma versão implementada, deste processo, sendo bastante estudada com perspectivas promissoras (CECE). A usina original da Noruega utilizava simplesmente a eletrólise para a produção da água pesada. Durante a ocupação alemã, estavam sendo adicionadas unidades de intercâmbio água-hidrogênio, quando em 1943 a instalação foi destruída por bombardeios aéreos. Depois da guerra a usina foi reconstruída e ampliada.

Durante a segunda guerra, nos Estados Unidos da América, a destilação de água foi utilizada por algum tempo em três pequenas usinas.

Nos Estados Unidos da América, durante os anos cinquenta houve necessidade de uma grande capacidade de produção de água pesada, sendo o processo GS o escolhido para a construção de duas usinas de 500 toneladas/ano. Nos anos sessenta, o processo GS foi também o escolhido no Canadá para o suprimento do programa dos reatores CANDU, sendo que em 1977 a capacidade instalada era de 1 600 toneladas/ano, com três usinas em operação e outras três em construção. Também na Índia uma usina de 100t/ano estava em construção.

Quanto à destilação de hidrogênio, cinco usinas de pequeno porte foram operadas. A usina da Índia, com capacidade de 13 t/ano, continuava em operação em 1977. As dimensões das instalações soviéticas não são conhecidas.

Na França foi operada durante vários anos uma usina de 25 t/ano utilizando o intercâmbio amônia-hidrogênio e na Índia esse processo também vem sendo adotado / 58 /

TABELA 2 12- USINAS DE PRODUÇÃO DE ÁGUA PESADA ( 1977 )

Processo	Países	USINAS			Primeira Usina	Capacidade em operação ( 1977 ) t/ ano
		Fechar-das	em opera-ção	em cons-trução		
Eletrólise & $H_2O/H_2$	Noruega Canadá	1	1	-	1934	30
Destilação $H_2O$	EUA	3	-	-	1944	-
GS	EUA, Canadá Índia	1	4	4	1952	1800
Destilação $H_2$	RFA, URSS , França, Suí-ça, Índia	3	2	-	1958	>13
$NH_3/H_2$	França , Índia	1	-	3	1968	-

Antes de descrever sucintamente as características mais importantes de alguns dos processos de produção da água pesada é interessante tecer alguns comentários genéricos sobre o problema da separação do deutério

A presença do deutério na natureza é dada pela relação deutério/hidrogênio extremamente baixa aproximadamente 150 ppm. Esse é o principal fator que leva ao custo elevado da água pesada, já que é necessário processar no mínimo 8000 moles de matéria prima para obter 1 mol de produto. Esse aspecto, em conjunto com o número muito grande de elementos separativos necessários, faz com que as instalações sejam bastante volumosas, em comparação com a maioria das demais indústrias químicas, exigindo investimentos elevados e grande fornecimento de energia.

### 2 3 3 1- Destilação do Hidrogênio Líquido

O ponto de ebulição do hidrogênio é muito baixo, cerca de 20K. O líquido é incolor, pouco viscoso e pouco denso. Na Tabela 2 13 estão registradas algumas propriedades características do hidrogênio, do deutério e do HD, bem como as do nitrogênio para comparação.

Como se vê, é notável a diferença dos pontos de ebulição das espécies moleculares  $H_2$ , HD e  $D_2$ , o que também se verifica nos valores das respectivas tensões de vapor. A relação entre as tensões de vapor do  $H_2$  e do HD é, por exemplo, cerca de 1,63 a 22 K (aprox. 1,7 atm), como mostra a Figura 2 1.

Todavia, nessas condições, a volatilidade relativa do  $H_2$  em relação ao HD (como o fator de separação) é cerca de 1,57 em solução pobre deste último componente. Isto é devido a dois motivos: o hidrogênio gasoso nessas condições de temperatura e pressão não se comporta como um gás perfeito e a solução HD- $H_2$  não é ideal.

Os valores relativamente elevados do fator de separação elementar na destilação do hidrogênio líquido, permitem, ao contrário do que acontece com a destilação da água, a obtenção de um elevado enriquecimento com um número de estágios não muito elevado. Para a produção de 1 t de  $D_2O$  por mês, o diâmetro da primeira coluna deve ser, aproximadamente, de 1,2 m. O volume das instalações necessárias é inferior às das de destilação de água por duas ordens de grandeza.

Para a destilação do hidrogênio, o problema do dimensionamento ótimo da cascata não é crítico. Uma vez estabelecido um eficiente ciclo termodinâmico, as dificuldades concentram-se em alguns problemas tecnológicos, entre os quais a purificação do gás de alimentação e o isolamento térmico das instalações.

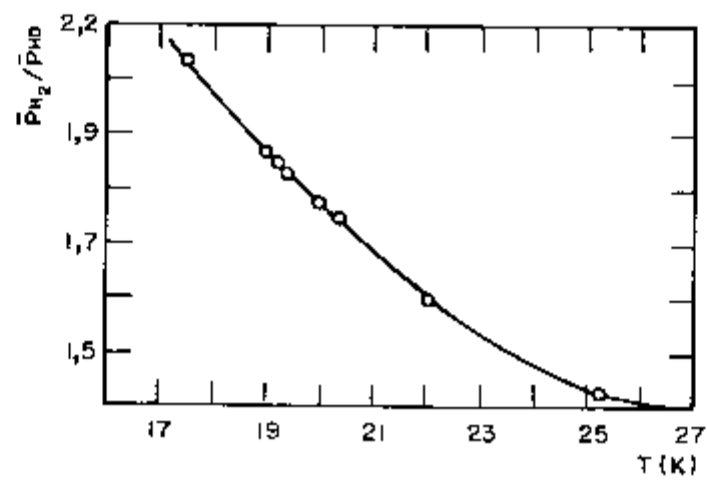


FIGURA 21 - RELAÇÃO ENTRE AS TENSÕES DE VAPOR DO H<sub>2</sub> E DO HD EM FUNÇÃO DA TEMPERATURA

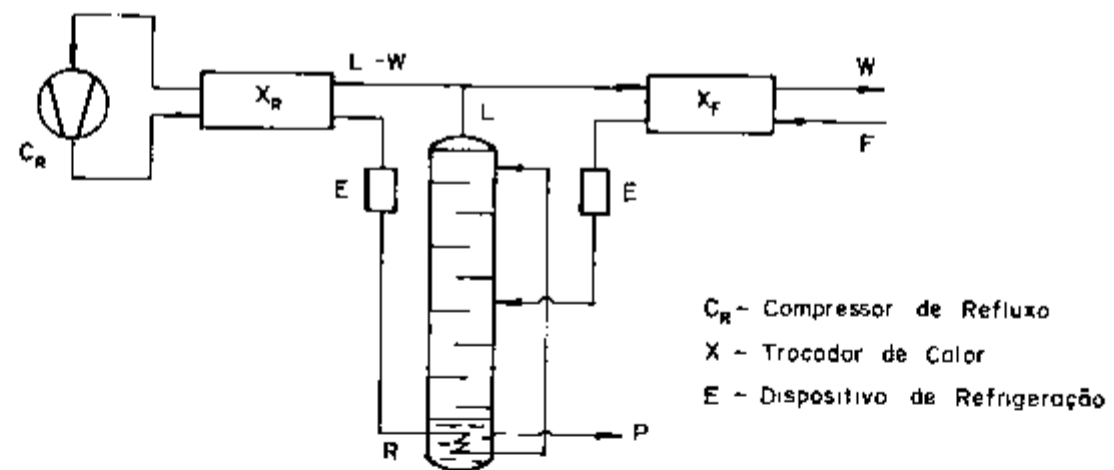


FIGURA 22 - PROCESSO DE DESTILAÇÃO DO HIDROGÊNIO

TABELA 2 13 - PROPRIEDADES DO HIDROGÊNIO E DO NITROGÊNIO RELATIVAS À DESTILAÇÃO

Substância	Ponto de ebulição ( K )	Massa específica do líquido no ponto de ebulição ( kg/m <sup>3</sup> )	Massa específica do vapor no ponto de ebulição ( kg/m <sup>3</sup> )	Massa específica do vapor C N T P (kg/m <sup>3</sup> )	Calor latente de evaporação no ponto de ebulição (cal/mol)
H <sub>2</sub>	20,38	70,4	1,309	0,0899	208
HD	22,13	113,4	-	-	-
D <sub>2</sub>	23,56	161,4	-	-	311,5
N <sub>2</sub>	77,35	802	4,59	1,26	1340



A destilação do hidrogênio leva vantagem em relação à destilação da água, principalmente por dois fatores a) seu maior fator de separação implica em menores quantidades (L) a evaporar por unidade de produto, e b) o calor de evaporação do H<sub>2</sub> em 20 K é de apenas 200 cal/mol enquanto que o do H<sub>2</sub>O é de 9 700 cal/mol em 373 K

Estes fatos fazem com que as perdas de energia útil devidas às várias causas de irreversibilidade, levem a um consumo específico de energia muitíssimo inferior ao requerido pela destilação da água

Um esquema do princípio da destilação fracionada está ilustrado na Figura 2.2. Uma parte do gás empobrecido (L-W) em deutério que deixa o extremo superior da coluna de destilação é recomprimido pelo compressor Cr e recondensado na serpentina do ebulidor R situado na base da coluna. Depois disso é introduzido na parte superior para constituir o refluxo líquido. Adota-se normalmente, uma taxa de refluxo (L-W)/W no intervalo entre 2,5 - 1

O gás de refluxo L - W e o de alimentação F passam, respectivamente, através dos trocadores Xr e Xf, mas devem ser integrados a dispositivos de refrigeração para compensar a perda térmica nos trocadores e outras irreversibilidades. Esses dispositivos são constituídos por um ou mais sistemas combinados a) ciclos auxiliares de refrigeração (NH<sub>3</sub> ou N<sub>2</sub> líquido), b) expansão rápida (efeito Joule - Thomson), c) turbinas de expansão /24, 59, 69 /

### 2.3.3.2- Destilação da Água

A água contém as três espécies moleculares H<sub>2</sub>O, HDO e D<sub>2</sub>O. A concentração natural do deutério (fração atômica) é de aproximadamente,  $1,49 \times 10^{-4}$ . O fator de separação elementar para a separação do deutério mediante a destilação da água pode ser expresso por

$$\alpha = [X(1-X)] / [x/(1-x)]$$

onde  $X$  é a fração molar do deutério na fase líquida e  $x$  a fração molar na fase do vapor. Se considerarmos as seguintes hipóteses

- 1) as fases, líquido e vapor, são soluções ideais
- 2) a pressão de vapor do HDO é a média geométrica das pressões de vapor do  $H_2O$  e do  $D_2O$
- 3) a constante de equilíbrio da reação

$H_2O + D_2O \rightleftharpoons 2HDO$ , na fase líquida, vale

$$K = \frac{[HDO]^2}{[H_2O][D_2O]} = 4,0$$

- 4) esse equilíbrio é mantido no líquido

teremos que o fator de separação elementar, para a obtenção de deutério por meio da destilação da água corresponde a

$$\alpha = \sqrt{\frac{\bar{P}_{H_2O}}{\bar{P}_{D_2O}}} \quad \text{onde } \bar{P}_{H_2O} \text{ e } \bar{P}_{D_2O} \text{ são as tensões de va}$$

por do  $H_2O$  e do  $D_2O$  respectivamente

Na Tabela 2 14 vemos como varia a razão  $\bar{P}_{H_2O}/\bar{P}_{D_2O}$  em função da temperatura. Realmente,  $\alpha$  é independente das concentrações, mas não da temperatura, já que  $\bar{P}_{H_2O}$  e  $\bar{P}_{D_2O}$  dependem da temperatura de modo distinto.

Em  $50^\circ C$ ,  $\alpha = 1,052$  enquanto a  $100^\circ C$ ,  $\alpha = 1,026$ . Com um fator de separação tão pequeno, e a baixa concentração de deutério na água natural, as cascatas de destilação devem ter muitos estágios e um volume total muito grande.

Com um enriquecimento ótimo por estágio, o número de estágios, em 50°C, para obter água numa concentração de 99,75%, teremos um número total de estágios igual a

$$N = \frac{\ln \frac{99,75}{0,0025 \cdot 1,5}}{0,025} = 600$$

Para uma usina real, com um número ótimo de estágios, devem ser fornecidos cerca de 200 000 kg de vapor por kg de D<sub>2</sub>O produzido

A destilação da água para separação de deutério difere de todos os outros processos de destilação pela diferença extremamente pequena entre o ponto normal de ebulição dos componentes-chave, H<sub>2</sub>O e HDO 0,7°C. A razão de reebulição do vapor é extraordinariamente alta e o consumo de energia térmica por unidade produzida é enorme

Este processo, devido aos altos custos envolvidos, é utilizado atualmente apenas nas etapas finais de enriquecimento, onde as limitações econômicas não se fazem sentir tanto (Savannah River - EUA e Canadá)

Em Savannah River há instalações destilativas para a concentração final, partindo de 10% D<sub>2</sub>O, cujo esquema está ilustrado na Figura 2 3

Cada unidade é constituída de seis colunas em série, sendo as duas primeiras na realidade uma única coluna dividida em duas partes, com um único ebulidor. A unidade tem uma capacidade produtiva de aproximadamente 250 t D<sub>2</sub>O/a. A Tabela 2 15 reúne algumas de suas características de construção e funcionamento

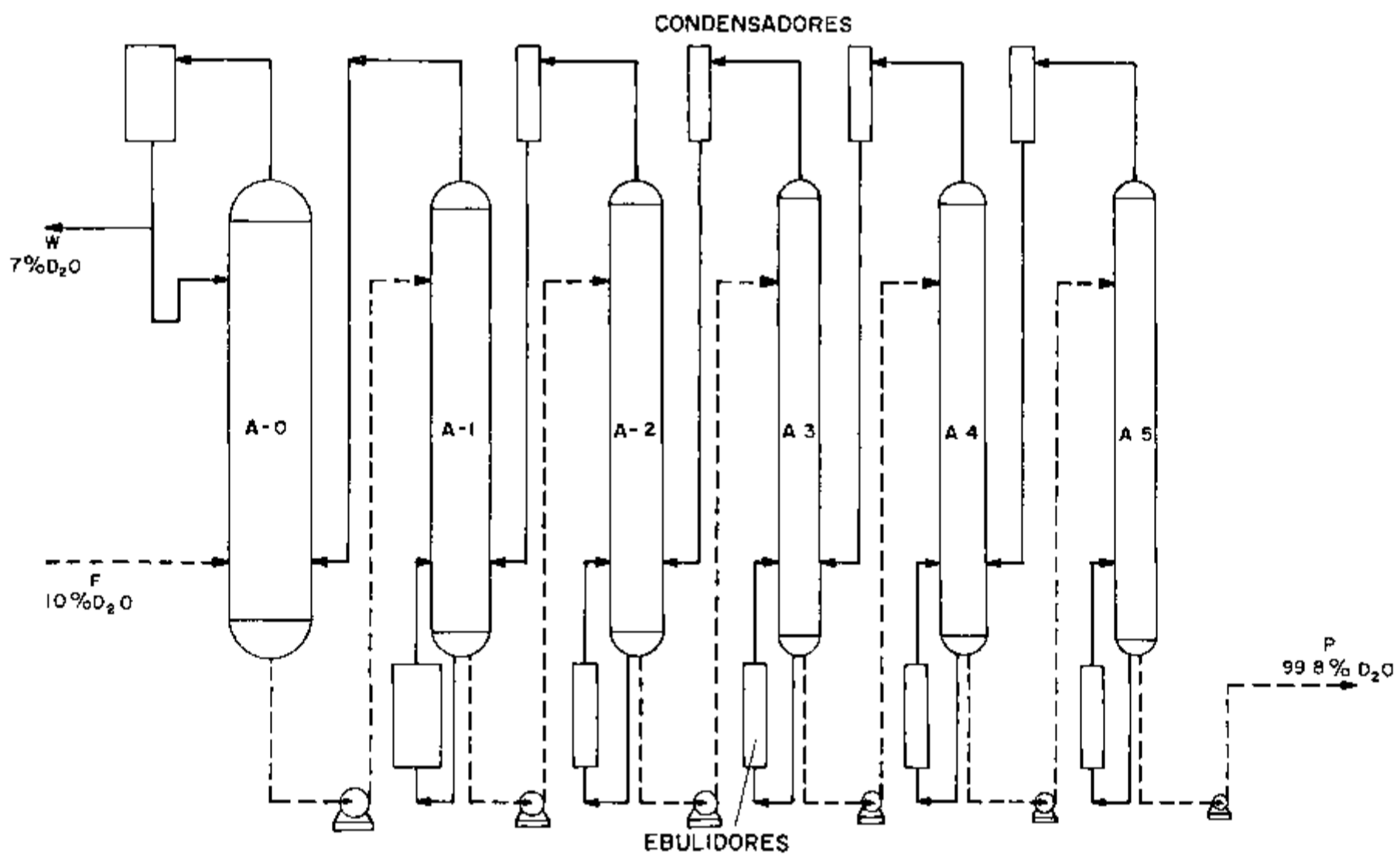


FIGURA 23 - DIAGRAMA ESQUEMATICO DE UMA UNIDADE DE DESTILAÇÃO DE AGUA DE SAVANNAH RIVER (EUA) PARA CONCENTRAÇÃO FINAL

TABELA 2 14- RELAÇÃO ENTRE AS TENSÕES DE VAPOR DO H<sub>2</sub>O E D<sub>2</sub>O

Temperatura (°C)	$\bar{P}_{H_2O}/\bar{P}_{D_2O}$	Temperatura (°C)	$\bar{P}_{H_2O}/\bar{P}_{D_2O}$
10	1,196	150	1,022
30	1,148	200	1,005
50	1,112	220	1,001
70	1,081	230	0,999
100	1,052	240	0,996

TABELA 2 15- CARACTERÍSTICAS DA INSTALAÇÃO DE SAVANNAH RIVER  
(DESTILAÇÃO DE ÁGUA)

Estágio	1	2	3	4	5	6
Colunas						
Diâmetro(m)	2,30	1,70	1,50	1,20	1,20	1,20
Número de pratos	72	84	72	72	72	72
Pressão ( Torr )						
Na saída	100	330	100	100	100	100
Na base	320	570	320	320	320	320
Concentração D <sub>2</sub> O (%)						
Na saída	3	10	20	40	68	90
Na base	10	20	40	68	90	99,75
Ebulidores						
Superfície de troca(m <sup>2</sup> )	-	560	200	140	140	140
Temperatura (°C)	-	92	72	72	72	72
Vapor requerido(kg/h)	-	5000	2300	1400	1400	1400
Condensadores						
Superfície de troca(m <sup>2</sup> )	280	-	120	79	79	79

A destilação da água é também o processo geralmente usado como alternativa ou em combinação com a eletrólise, para a reconcentração da água pesada usada nos reatores nucleares, degradada por várias causas / 5, 51 /

### 2 3 3 3- Eletrólise da Água

Como se sabe, na eletrólise da água acidulada, alcalinizada ou contendo um sal (com ânions oxigenados) obtém-se hidrogênio no cátodo e oxigênio no ânodo. O hidrogênio produzido dessa forma possui um conteúdo de deutério inferior ao da solução aquosa de que provém.

O fator de separação  $\alpha$  do processo, definido como a razão entre a abundância relativa do deutério na água e a abundância relativa no hidrogênio produzido, tem valores bastante elevados, geralmente superiores a 3,0.

O processo pode ser utilizado seja com o sistema de redução do volume de uma porção inicial de água (obtendo-se o progressivo enriquecimento da água residual na célula eletrolítica), seja com o processo contínuo, no qual, graças ao contínuo fluxo de água nas células as concentrações são estacionárias.

Para a produção de água pesada, o fator de separação eletrolítico depende apenas fracamente da natureza, da concentração do eletrólito e do seu enriquecimento em deutério. Ao contrário,  $\alpha$  é bastante sensível à influência dos seguintes fatores:

- temperatura ,
- material e tratamento superficial dos eletrodos ,
- impurezas na solução eletrolítica

Na Tabela 2 16 vemos o fator de separação em função da temperatura do cátodo, dadas as seguintes condições

TABELA 2 16- FATOR DE SEPARAÇÃO POR ELETRÓLISE EM FUNÇÃO DA TEMPERATURA DO CÁTODO

Temperatura (°C)	Fator de Separação ( $\alpha$ )
- 19	17,5
1	14,4
6	13,2
15	12,7
25	10,6
50	8,6
75	7,1
97	5,8

TABELA 2 17- FATOR DE SEPARAÇÃO ELETROLÍTICA PARA O DEUTÉRIO COM CÁTODO DE DIVERSOS MATERIAIS

Cátodo *	Sobretensão H <sub>2</sub> (V)	Fator de Separação( $\alpha$ )
Ferro eletrolítico	-	13,2
Aço de baixo teor de carbono	0,49	12,2
Platina	0,75	8,8
Paládio	0,86	7,8
Chumbo	0,73	10,6
Prata	0,65	10,2
Níquel	0,57	8,0
Zinco	1,00	5,1
Cádmio	0,80	5,9
Estanho	1,00	5,5
Zircônio	0,95	4,0

\* Superfícies catódicas esmerilhadas

água alcalinizada com KOH a 5% - 20%, cátodo de ferro doce, densidade de corrente catódica =  $0,05 \text{ A/cm}^2$

Portanto, com o decréscimo da temperatura, o fator de separação aumenta. Na Tabela 2.17 estão os valores de  $\alpha$  determinados para diversos materiais de cátodo operando nas seguintes condições: células sem diafragma, densidade de corrente =  $0,05 \text{ A/cm}^2$ , temperatura do eletrólito =  $15^\circ\text{C}$ , concentração inicial de  $\text{D}_2\text{O}$  10%, concentração de KOH 5%

As diferenças encontradas são notáveis. O estado da superfície influencia também no fator de separação: os depósitos, incrustações e deterioração da superfície do eletrodo são a causa dos baixos valores de  $\alpha$  obtidos nas células eletrolíticas comerciais.

Quanto às impurezas contidas no banho eletrolítico, sabe-se que certos compostos de metais pesados, como Zn, Sn e Pb produzem uma considerável diminuição do fator de separação. Operando, por exemplo, com cátodo de ferro doce, em condições próximas às quais se refere a Tabela 2.16 foram obtidos valores de  $\alpha$  entre 10,8 e 6,7 para concentrações de  $\text{ZnO}$  variando entre  $10^{-6}$  e  $10^{-2}$  moles/l.

Na Figura 2.4 vemos um esquema do princípio de funcionamento de uma instalação eletrolítica com queima do hidrogênio e reciclagem nos estágios com concentração mais elevada / 4, 25, 69 /

#### 2.3.3.4 - Reações de Intercâmbio

Várias reações de intercâmbio isotópico proporcionam fatores de separação apreciáveis para o deutério. As reações de intercâmbio mais importantes são as seguintes:



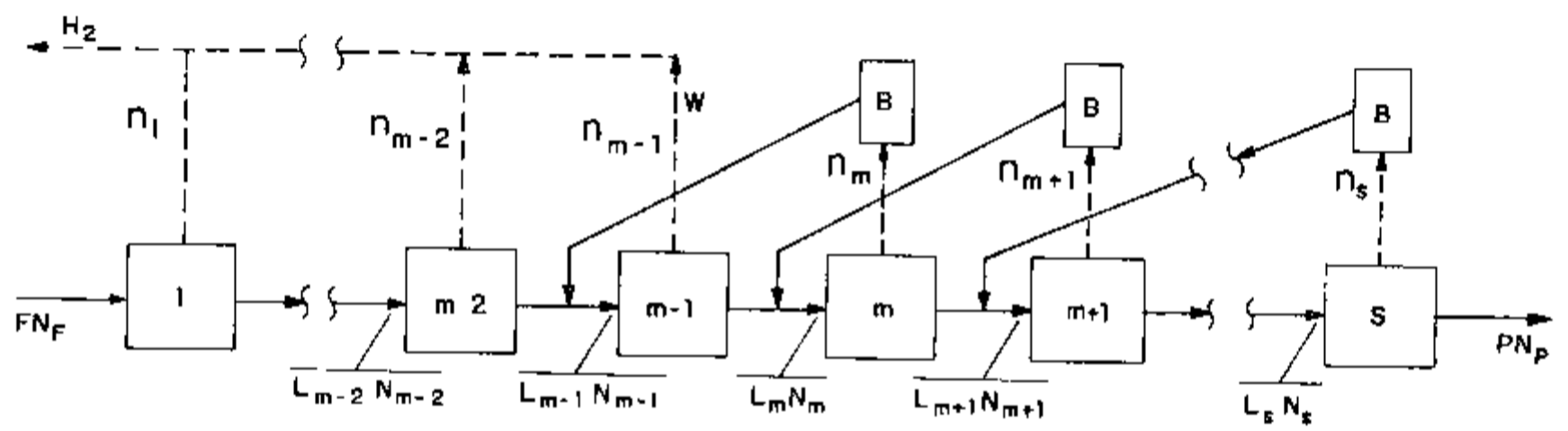
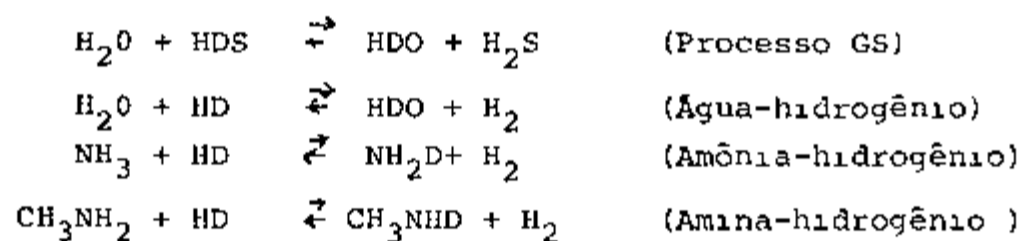


FIGURA 2.4 - ESQUEMA DO PROCESSO DE UMA INSTALAÇÃO ELETROLÍTICA COM REFLUXO NOS ESTAGIOS DE CONCENTRAÇÃO MAIS ELEVADA



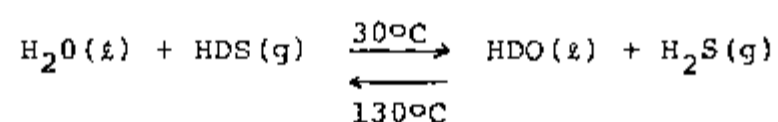
a - Processo GS

Neste processo o deutério é transferido de uma molécula de água para outra de sulfeto de hidrogênio e vice-versa. Para esta reação a constante de equilíbrio é aproximadamente igual ao fator de separação. Na temperatura de 303 K,  $\alpha = 2,33$  e em 403 K,  $\alpha = 1,82$ , sendo esta diferença a base do processo de concentração bitérmico. Para a obtenção de 1 kg de  $D_2O$  por meio deste processo é necessário o fornecimento de 35 toneladas de água, o consumo de energia térmica é de 25 GJ por kg de  $D_2O$  e o de energia elétrica de 700 kWh por kg de  $D_2O$ .

Na usina de produção de água pesada de Glace Bay A, no Canadá, em funcionamento desde 1973, a água é bombeada do lago Huron, numa vazão de cerca de  $57m^3$ /minuto, com um corteúdo de deutério de 148 mg/kg, sendo filtrada e pré-aquecida a 29°C, tratada e degaseificada sendo então enviada às unidades de enriquecimento. Cada unidade de produção é constituída por duas unidades de enriquecimento e uma de concentração final. Cada unidade de enriquecimento é constituída por três seções: absorção e desabsorção, extração e seção de enriquecimento.

A seção de absorção e desabsorção tem duas funções: a remoção do  $H_2S$  da água empobrecida, antes do seu reenvio ao lago e a remoção do  $H_2S$  do gás de purga antes de sua queima. Conforme a água de alimentação passa por esta seção, a mesma é parcialmente saturada com  $H_2S$ .

Na seção de extração a água passa em contra-corrente ao escoamento recirculante do  $H_2S$  em três grandes torres - (60m de altura e 7 m de diâmetro) operando em paralelo, as quais constituem o primeiro estágio. Esse estágio utiliza duas temperaturas para a reação de intercâmbio entre o  $H_2S$  e a água: a  $30^\circ C$  o deutério é concentrado na fase líquida e a  $130^\circ C$  o deutério é concentrado na fase gasosa, como indicado abaixo:



As três torres do primeiro estágio tem, cada uma, duas seções com temperaturas distintas de operação, sendo a seção superior fria e a seção inferior quente. O deutério é transferido para o segundo estágio, unicamente na fase gasosa, enquanto que a fração não extraída é devolvida ao lago depois de retirado o  $H_2S$  e de ser resfriada. Se a porcentagem de  $H_2S$  excede os limites legais, a água é desviada para reservatórios a céu aberto onde é removido o  $H_2S$  em excesso, sendo somente então devolvida ao lago.

O segundo e terceiro estágios apenas enriquecem ou concentram o deutério que foi extraído no primeiro estágio. O segundo estágio consiste de uma única torre, de operação similar às já descritas, só que não conta com seção de aquecimento, pois o gás já vem quente do primeiro estágio. A circulação de líquido é mantida por um circuito de recirculação de água dotado de resfriador. O terceiro estágio consiste de duas torres, uma fria e outra quente. A água enriquecida do fundo da torre fria, ao atingir 20-30% de  $D_2O$  é transferida para a unidade de concentração final, enquanto o  $H_2S$  contido neste líquido é retirado e devolvido ao circuito de gás do terceiro estágio.

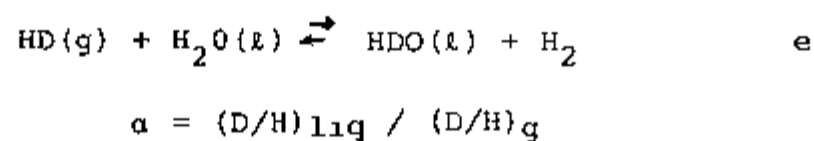
A unidade de concentração final consiste de três estágios de destilação de água com quatro torres, a qual concentra o produto das unidades de enriquecimento até obter o grau

necessário para a utilização em reatores nucleares. A produção da usina de Glace Bay A é de cerca de 100kg de D<sub>2</sub>O por hora.

O processo GS é responsável por mais de 90% de toda a água pesada produzida até hoje, basicamente em virtude de ser o único processo independente, alimentado diretamente com água, que se mostrou economicamente razoável para produção de D<sub>2</sub>O em grande escala (centenas de toneladas por ano) / 9, 58/

#### b - Intercâmbio Hidrogênio-Água

Este processo está sendo estudado com bastante interesse, já que apresenta muitas vantagens inerentes, potencialmente. A reação de intercâmbio isotópico hidrogênio-água é mais atrativa, basicamente em função do seu maior fator de separação,  $\alpha$ , em relação ao processo GS.



Como pode ser visto na Figura 2.5, o fator de separação para o intercâmbio hidrogênio-água líquida é cerca de duas vezes superior ao fator do intercâmbio H<sub>2</sub>S-água, na faixa de 0 - 200°C. Para ambas as reações, em baixas concentrações do deutério,  $\alpha$  é igual à constante de equilíbrio das mesmas. Como resultado, um processo baseado no intercâmbio H<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O terá uma recuperação de deutério bem superior ao do H<sub>2</sub>S - H<sub>2</sub>O (cerca de 50% contra 21%), requerendo portanto, instalações bem menos volumosas.

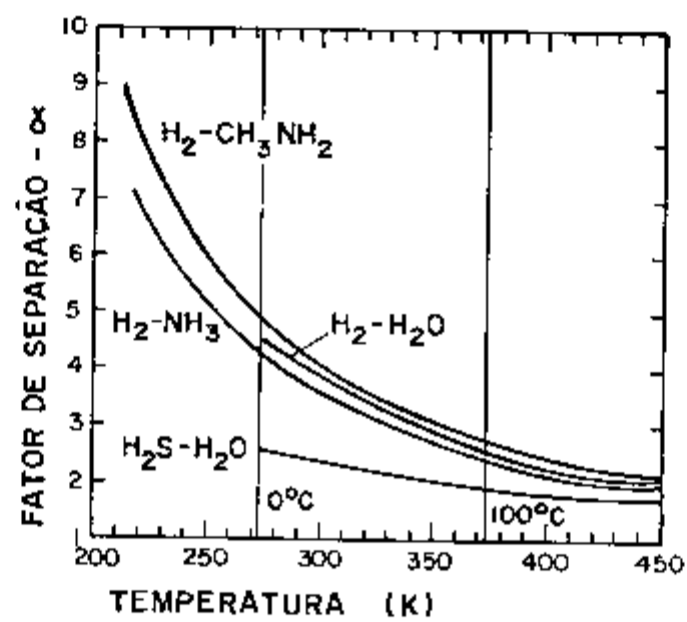
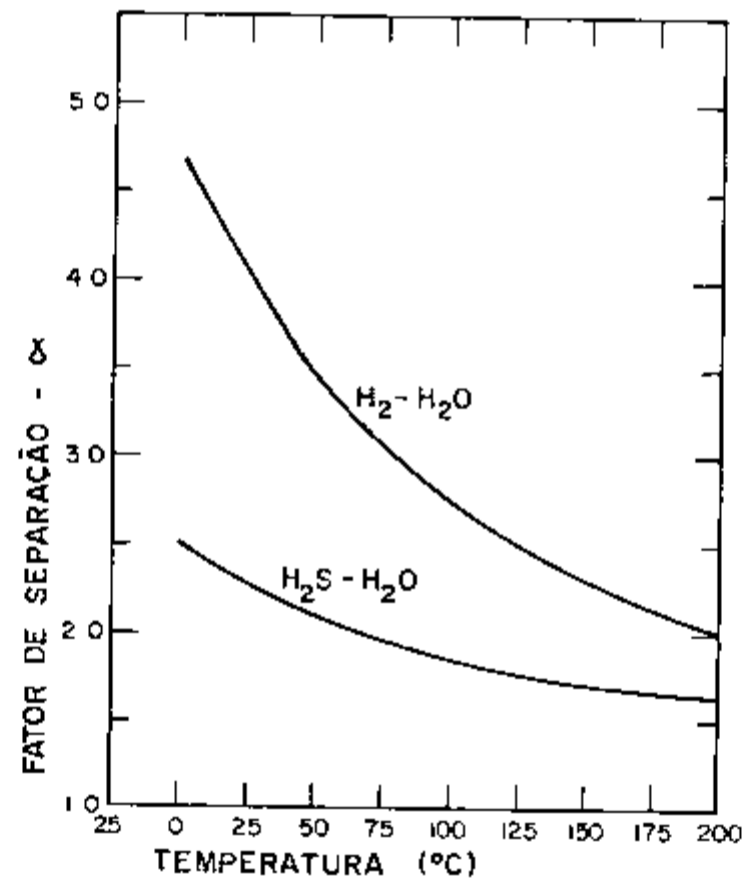


FIGURA 2.5 - FATOR DE SEPARAÇÃO,  $\alpha$ , EM FUNÇÃO DA TEMPERATURA, PARA OS PROCESSOS LÍQUIDO-GÁS  $\text{H}_2 - \text{H}_2\text{O}_{(l)}$  E  $\text{H}_2\text{S} - \text{H}_2\text{O}_{(l)}$  E TAMBÉM PARA  $\text{H}_2$ -AMÔNIA E  $\text{H}_2$ -AMINA

Apesar dessa grande vantagem, havia grande dificuldade para a obtenção de um catalizador que operasse com eficiência na presença de água líquida. Os catalizadores de metais nobres são já conhecidos a muitos anos, para o intercâmbio na fase gasosa, mas os mesmos perdem sua atividade em contato com a água líquida.

Esse problema vem agora sendo superado pela utilização de catalizadores apropriados para o intercâmbio gasoso, como platina metálica altamente dispersa depositada sobre alumina, revestindo-a então com uma finíssima camada de material repelente à água, como polímeros a base de silicone, para impedir a perda de atividade.

Numa primeira aproximação, a transferência do deutério entre as correntes de hidrogênio e água líquida sobre catalizadores a prova d'água pode ser dividida em duas etapas. A primeira corresponde à transferência catalítica do deutério da corrente de hidrogênio enriquecido para o vapor d'água e a segunda corresponde à transferência do vapor d'água para a água líquida, a qual ocorre nas superfícies da coluna de intercâmbio.

Os processos baseados no intercâmbio  $H_2-H_2O$  tem, potencialmente, muitas vantagens em relação ao processo GS, apresentadas sucintamente a seguir:

- maior fator de separação
- maior recuperação de deutério
- menores vazões de água e de gás
- menores colunas de intercâmbio
- química mais simples
- sistema não corrosivo
- não tóxico
- pequeno impacto ambiental (sem poluição)
- utilização de apenas uma reação de intercâmbio

Essas vantagens genéricas são aplicáveis a qualquer processo baseado no intercâmbio  $H_2-H_2O$ , mas são particularmente relevantes para o processo CECE (Combined Electrolysis Catalytic Exchange) eletrólise combinada com intercâmbio catalítico) Este processo acopla as colunas de intercâmbio catalítico à corrente gasosa de hidrogênio de células eletrolíticas, formando um sistema bastante efetivo de enriquecimento do deutério e possibilitando uma recuperação de deutério de 70% a partir de água natural Além disso, o volume das colunas de intercâmbio é de apenas 1/25 do volume das torres utilizadas no processo GS, para a mesma produção de água pesada

A química do sistema é mais simples e as condições de operação do sistema CECE são próximas as do ambiente O sistema não é corrosivo, ao contrário do processo GS, onde os problemas com corrosão são frequentes Além de ser não tóxico e não poluente, o processo CECE fornece dois produtos de valor econômico água pesada e grande quantidade de hidrogênio Também o oxigênio eletrolítico pode ser considerado um produto adicional

Finalmente o processo é capaz de enriquecer o deutério até a concentração final de 99,75%  $D_2O$ , dispensando a complexidade gerada por outros processos que requerem diferentes processos para as diversas etapas de enriquecimento

A principal desvantagem do processo CECE é que o mesmo requer grandes quantidades de energia elétrica para as células eletrolíticas, além do preço dos catalizadores relativamente alto, sendo, todavia, pequena sua participação no custo total do investimento / 5 , 6 , 69 /

#### c - Outros Processos do Intercâmbio

Além do processo GS e do processo hidrogênio-água são importantes também os processos amônia-hidrogênio e amí -

na-hidrogênio. Nos dois casos a fase gasosa é constituída pelo hidrogênio, enquanto a fase líquida é constituída pelo outro componente.

O intercâmbio amônia-hidrogênio é facilmente adaptado à operação monotérmica dado o calor de formação da amônia a partir do hidrogênio e nitrogênio ser relativamente baixo. Nesse caso, a fonte de deutério pode ser gás de síntese de amônia. A amônia líquida utilizada para intercâmbio é craqueada na base da coluna de intercâmbio e depois é novamente sintetizada na parte superior da coluna para o refluxo, processando-se dessa maneira de forma análoga a um processo de destilação. Esse processo foi pela primeira vez utilizado na França e depois na Índia.

Em Chalk River, no Canadá, chegou-se a conclusão de que o processo amônia-hidrogênio não oferecia vantagens frente ao processo GS, e iniciou-se o estudo do sistema amina-hidrogênio, já que, particularmente a metilamina oferece taxas de intercâmbio maiores que a amônia. Também na França são realizados estudos do sistema amina-hidrogênio. As áreas em desenvolvimento abrangem o estudo de catalizadores, da química e da concepção do processo.

Na Tabela 2.18 são apresentadas algumas características dos processos de intercâmbio químico, para comparação / 31 , 58 /



TABELA 2 18- CARACTERÍSTICAS DOS PROCESSOS DE INTERCÂMBIO QUÍMICO

Processo	Pressão (MPa )	Temperatura ( K )	Catalizador	Solubilidade do gás ( mol/m <sup>3</sup> MPa)
GS	2	303/400	-	830
Amina	7	220/315	CH <sub>3</sub> NHK	24
NH <sub>3</sub> /H <sub>2</sub>	7	230/330	NH <sub>2</sub> K	10
H <sub>2</sub> O/H <sub>2</sub>	10	300/440	Pt/C	8

Nas Figuras 2 6 e 2 7 são apresentados esquemas do processo simples monotérmico e do processo bitérmico com refluxo, de interesse para as reações de intercâmbio químico utilizadas na produção de água pesada

#### 2 3 4 Produção de Água Pesada no Brasil

A produção de água pesada em grande escala está, em geral, condicionada à existência de um plano de construção de reatores de potência, utilizando a água pesada como moderador. Contudo, é sem dúvida interessante para o País o estudo dos processos de obtenção da água pesada e a construção de instalações de pequeno porte, que possibilitem o estudo dos vários aspectos envolvidos na separação do deutério e, ainda, sejam capazes de produzir a água pesada em quantidade suficiente para uso em reatores de pesquisa, que porventura sejam construídos. Além disso é importante ressaltar que devido às características neutrônicas excelentes da água pesada, alguns tipos de reatores de pesquisa utilizam, com muitas vantagens, esse moderador, como é o caso de reatores que necessitam de grande volume para irradiação.

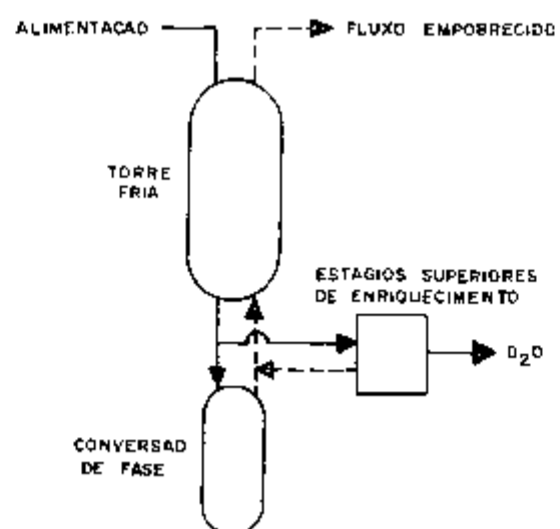


FIGURA 26 - ESQUEMA DO PROCESSO MONOTERMICO DE ENRIQUECIMENTO

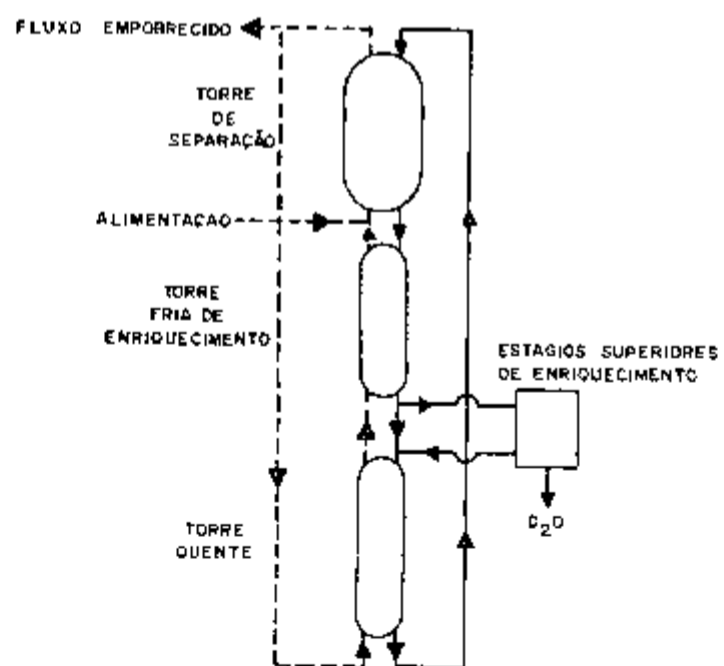


FIGURA 27 - ESQUEMA DO PROCESSO BITERMICO DE ENRIQUECIMENTO

Dentre todos os processos existentes, a utilização do processo eletrolítico, combinado com o intercâmbio químico hidrogênio-água (processo CECE), separando o deutério do hidrogênio produzido a partir de energia elétrica, disponível a baixo custo para a síntese de amônia, utilizada na fabricação de fertilizantes nitrogenados, é o que apresenta maiores vantagens para a produção de água pesada em pequena quantidade (menos de 50 toneladas/ano)

O processo de destilação de água, apesar de simples, requer a geração de grandes massas de vapor e instalações de dimensões consideráveis, dado o pequeno fator de separação elementar do processo. As únicas instalações primárias de destilação em Manhattan District, E U A, foram desativadas em 1945, mas provaram o alto custo da separação primária de  $D_2O$  por meio deste processo

A destilação do hidrogênio líquido é muito eficaz por sua grande seletividade, e existem diversas instalações que se valem desse processo, obtendo  $D_2O$  a preços razoáveis. Todavia, a complexidade que representa o resfriamento de grandes massas de  $H_2$  a 20K faz com que a instalação de tal sistema no Brasil seja problemática, já que não temos experiência relativa a instalações de grande porte trabalhando em baixíssimas temperaturas

O processo GS, responsável pela produção da maior parte da água pesada produzida até hoje, só é viável para produção em grande escala, mais de 200 toneladas por ano, o que somente se justificaria com a existência de um plano de construção de reatores de potência moderados por água pesada

O processo amina-hidrogênio indica boas perspectivas para um futuro próximo, e o processo amônia-hidrogênio pode ser utilizado em conjunto com plantas de produção de

amônia, a partir de gás de síntese, representando uma alternativa a ser estudada mais detidamente para a produção de água pesada no Brasil, tendo em vista, inclusive, que uma usina para produção de 63 ton/ano de  $D_2O$ , acoplada a uma usina de produção de amônia (900 ton/dia), tinha seu início de funcionamento previsto para 1978, na Índia, adotando o processo UHDE / 52 /

Nos últimos anos vem sendo discutida a proposta de produção de hidrogênio junto às usinas hidrelétricas nos períodos de menor demanda. A partir de 1981, quando verificou-se um excesso de oferta de energia elétrica superior a 10% da capacidade de produção, particularmente na região sudeste do País, e que deve verificar-se por mais alguns anos, a questão relativa à produção eletrolítica de  $H_2$  tomou novo impulso. O hidrogênio assim produzido poderia perfeitamente ser utilizado para a produção de amônia destinada à fabricação de fertilizantes nitrogenados / 65 / Segundo o Sindicato da Indústria de Adubos e Corretivos Agrícolas no Estado de São Paulo, o consumo de amônia vem aumentando bastante nos últimos anos, obrigando a um volume crescente de importação desse insumo, conforme os dados apresentados na Tabela 2.19

Na Noruega, a Norsk Hydro, produz água pesada como subproduto do hidrogênio eletrolítico, utilizando energia elétrica de baixo custo, há quase cinquenta anos. Atualmente é utilizado em conjunto com a eletrólise, o intercâmbio isotópico hidrogênio-água para a separação do deutério, obtendo-se cerca de 30 toneladas de  $D_2O$  por ano.

Na Índia, próximo às barragens de Bhakra e Nangal (450 MW), construiu-se uma usina de pré-enriquecimento eletrolítico. Cerca de 130 MW, a baixo custo unitário, eram empregados para a produção de 25 000  $Nm^3/h$  de hidrogênio destinado à síntese de 250 t/dia de amônia e obtenção de

TABELA 2 19- CONSUMO APARENTE DE AMÔNIA NO BRASIL

Ano	Produção Nacional (toneladas)	Importação (toneladas)	Total (toneladas)
1971	107 074	6 105	113 179
1972	120 108	25 270	145 378
1973	147 140	46 560	193 700
1974	191 439	75 423	266 862
1975	168 607	63 912	232 519
1976	117 881	139 608	257 489
1977	145 017	180 822	325 839
1978	209 474	184 217	393 691
1979	264 747	131 392	396 139
1980	356 573	171 229	527 802
1981	369 829	204 781	574 610

14 t/ano de  $D_2O$ . A concentração final do deutério era realizada por meio de destilação do hidrogênio, obtendo-se uma recuperação total superior a 50% de deutério / 11 /

Na Espanha, a J E N (Junta de Energia Nuclear) fez um acordo com a empresa Energia y Industrias Aragonesas, a qual dispunha de instalações eletrolíticas utilizadas na produção de hidrogênio, destinado à fabricação de fertilizantes nitrogenados, visando seu aproveitamento na produção de água pesada. A instalação foi adaptada e foi utilizado o processo de intercâmbio água-hidrogênio com catalizadores trabalhando a seco, produzindo 0,5 toneladas por ano de  $D_2O$  /54, 55 , 69 /

Nos Laboratórios Nucleares de Chalk River, no Canadá, vem sendo estudado, com perspectivas muito promissoras, o processo CECE, já comentado na alínea b do item 2 3 3 4, o qual consiste na eletrólise combinada com o intercâmbio catalítico  $H_2-H_2O$ , o qual apresenta diversas vantagens, já descritas. A Figura 2 8 apresenta o esquema da unidade de demonstração do processo CECE construída em Chalk River Hammerli e outros afirmam a viabilidade da utilização do processo CECE, com o aproveitamento da energia hidrelétrica excedente, para a produção de hidrogênio, e de água pesada em pequena escala (até 70 toneladas/ano) / 28 /

Em termos econômicos, os processos podem ser comparados por meio dos dados apresentados na Figura 2 9, onde o processo CECE é representado por dois pontos: o ponto de alto consumo energético no caso em que não há mercado para o hidrogênio eletrolítico, e o ponto de baixo consumo energético no caso da água pesada ser obtida como subproduto da produção de hidrogênio / 58 /

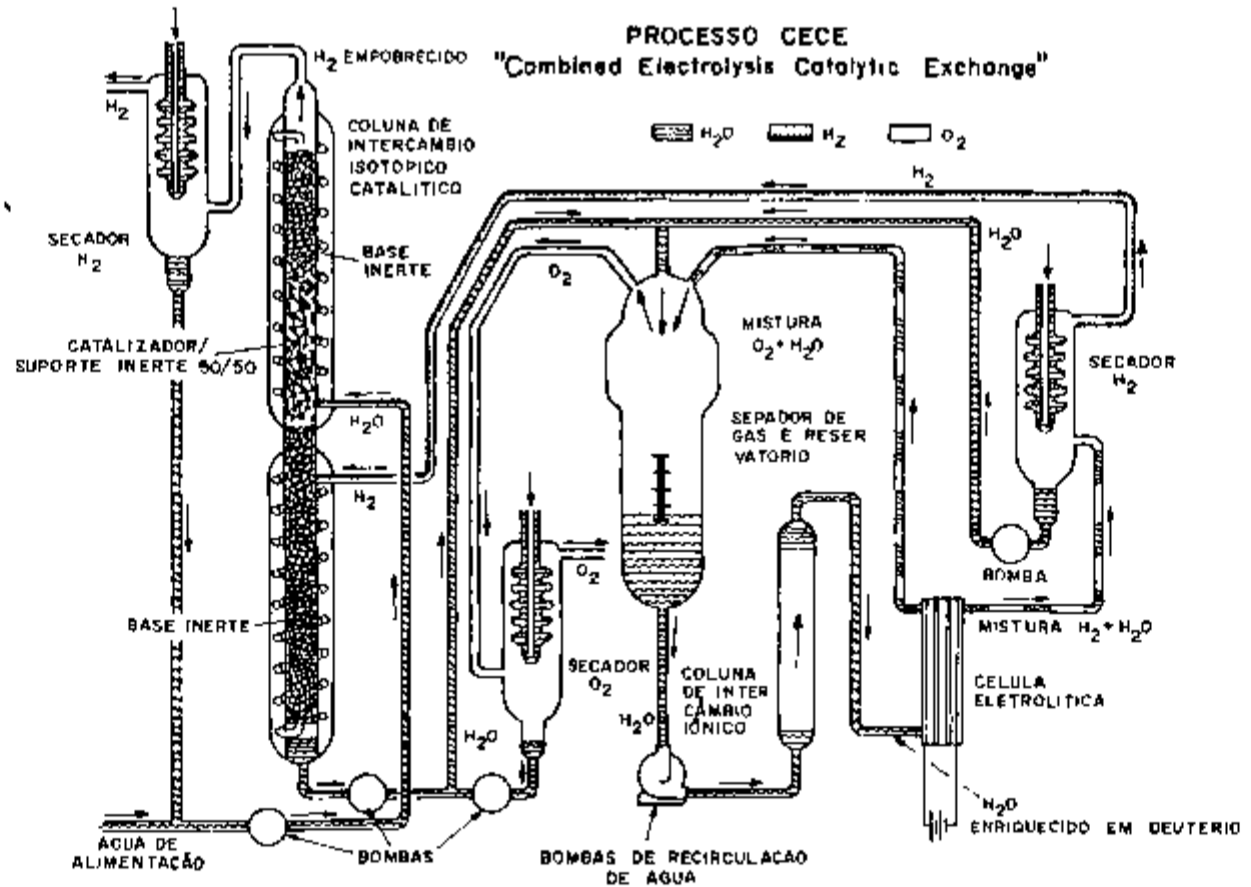


FIGURA 2 B - ESQUEMA DA UNIDADE DE LABORATORIO PARA DEMONSTRACAO DO PROCESSO CECE, DE ELETROLISE COMBINADA COM INTERCAMBIO CATALITICO, MONTADA EM CHALK RIVER, CANADA

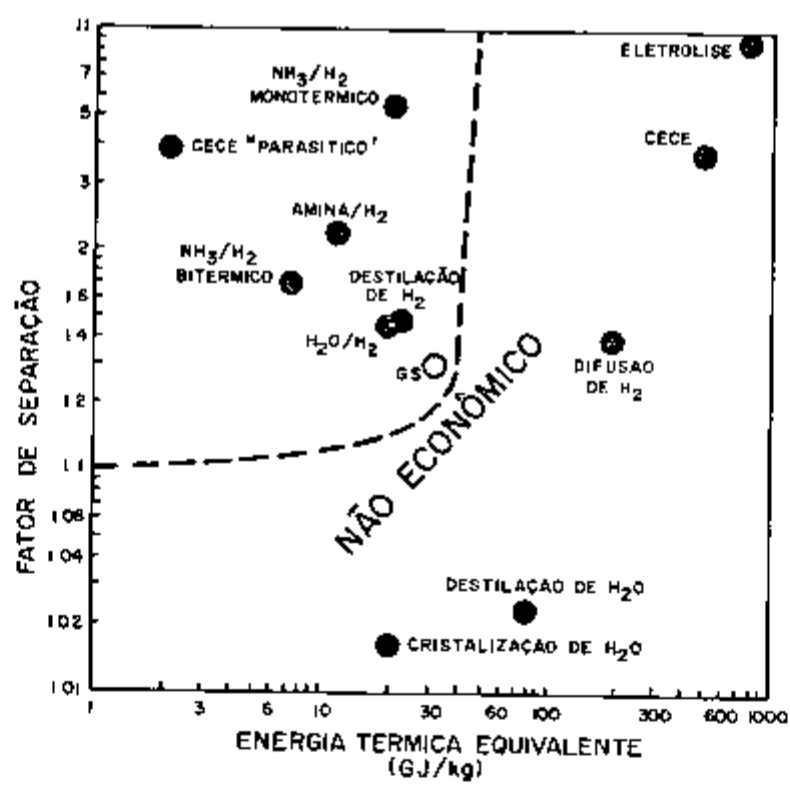


FIGURA 29 - COMPARAÇÃO ECONÔMICA DE VÁRIOS PROCESSOS DE PRODUÇÃO DE ÁGUA PESADA, EM FUNÇÃO DA ENERGIA TÉRMICA EQUIVALENTE NECESSÁRIA POR kg DE D<sub>2</sub>O PRODUZIDO



No caso de ser adotado no País o processo CECE, a partir de energia elétrica disponível a baixo custo, para obtenção de hidrogênio a ser utilizado na fabricação de amônia, e produção de água pesada, teríamos que, com uma potência elétrica de cerca de 100 MW poderiam ser obtidos, aproximadamente, 19 000 Nm<sup>3</sup>/h de hidrogênio, para a síntese de 190 toneladas/dia de amônia, e produzindo-se mais de 14 toneladas/ano de D<sub>2</sub>O. Para que se tenha noção do vulto de tal empreendimento é interessante notar que a capacidade de geração hidrelétrica, apenas da CESP (Companhia Energética de São Paulo), no início de 1981, era de 8257,68 MW (Potência Instalada) e de 3830 MW (Potência Firme)

#### 2.4 Encamisamento do Combustível

O requisito básico para um material ser utilizado como revestimento do combustível em reatores térmicos é ter uma baixa seção de choque de captura neutrônica, principalmente quando a economia de nêutrons é muito importante. Além disso, o revestimento deve ser resistente a tensões e ao escoamento ("creep"), estável termicamente e sob irradiação, usinável, bom condutor de calor, compatível com o urânio e também não ser muito caro.

Na Tabela 2.20 são apresentadas as seções de choque de captura e os pontos de fusão de diversos materiais.

Os metais que apresentam menores seções de choque são o berílio, o magnésio, o zircônio e o alumínio. O berílio, além de requerer precauções especiais durante o processamento, apresenta baixa ductibilidade sob irradiação, o que dificulta a acomodação das deformações sofridas pelo urânio. O magnésio sofre corrosão rápida em presença da água, mesmo em temperaturas não muito elevadas. As ligas de zircônio

apresentam boas propriedades mecânicas e de resistência à corrosão pela água, contudo, os processos metalúrgicos empregados na sua fabricação são bem mais complexos do que as técnicas envolvidas na produção do alumínio, o qual é também bem mais barato que o zircônio

#### 2 4 1 Propriedades Físicas e Mecânicas do Alumínio

O alumínio 1100 (pureza superior à 99,0%) é bastante usado como material estrutural para encamisamento de elementos combustíveis em meios que não envolvem sua exposição a temperaturas elevadas. No nosso caso, a temperatura de mistura do refrigerante é inferior a 60°C e a do alumínio não atinge 100°C. Da Tabela 2 21 constam algumas propriedades físicas dessa liga, entre as quais, a sua boa condutibilidade térmica

O alumínio 1100 (ou 25) tem boas propriedades de conformação e algumas de suas propriedades mecânicas podem ser vistas na Tabela 2 22 para três tratamentos térmicos distintos. A variação das propriedades mecânicas com a temperatura está na Tabela 2 23, sendo que as amostras permaneceram nas temperaturas indicadas durante 10 000 horas

Na Tabela 2 24 são apresentados os limites da composição química da liga 1100, do alumínio

#### 2 4 2 Corrosão

Esta liga forma uma película protetora de óxido quando exposta à água em ebulição à pressão atmosférica, logo até essa faixa de temperatura não se verificam problemas sérios de corrosão. Todavia, em temperaturas acima de 120°C, o alumínio de alta pureza, quando em contacto com água destilada, sofre um rápido ataque e penetração intergranular. Esse problema tem sido parcialmente superado pela adição de níquel (aprox 1% em massa), bem como de ferro e silício que aumentam a resistência à corrosão. De qualquer modo, a máxima temperatura para utilização do alumínio como encamisamento do urânio deve permanecer abaixo de 240°C

TABELA 2 20- PROPRIEDADES DE ALGUNS MATERIAIS ESTRUTURAIS

Material	$\sigma_a$ (bains)	ponto de fusão (°C)
Berílio	0,010	1280
Magnésio	0,069	651
Zircônio	0,185	1845
Alumínio	0,24	660
Nióbio	1,2	2415
Ferro	2,6	1539
Molibdênio	2,7	2625
Cromo	3,1	1850
Cobre	3,8	1083
Níquel	4,6	1455
Vanádio	5,0	1900
Titânio	5,8	1670

Tabela 2 21 - PROPRIEDADES FÍSICAS DO ALUMÍNIO 1100

Massa Específica em 20°C (g/cm <sup>3</sup> )	2,71
Coeficiente Linear Médio de Expansão Térmica (10 <sup>-6</sup> °C <sup>-1</sup> )	
- de 20 a 100°C	23,6
- de 20 a 200°C	24,7
- de 20 a 300°C	25,6
Calor Específico em 100°C (cal/g°C)	0,23
Condutibilidade Térmica em 25°C ( W/cm°C)	2,22
Resistividade Elétrica em 20°C (μΩ cm)	2,9

TABELA 2 22 - PROPRIEDADES MECANICAS TÍPICAS DO ALUMÍNIO  
1100 (TUBOS DE 1,6mm de ESPESSURA)

Tratamento	Tensão de Escoamento ( MPa )	Resistência a Tração ( MPa )	Alongamento em 50 mm ( % )	Dureza (Rockwell H)
O	34,5	89,6	35	35 - 55
H-14	117,2	124,1	9	70 - 85
H-18	151,7	165,5	5	80 - 90
Módulo de elasticidade ( $10^3$ MPa)			69,0	
Módulo de rigidez ( $10^3$ MPa)			25,9	
Módulo de Poisson			0,33	

TABELA 2 23- PROPRIEDADES TÍPICAS DE RESISTÊNCIA À TRAÇÃO  
PARA O ALUMÍNIO 1100 (TRATAMENTO H-14) EM FUN  
ÇÃO DA TEMPERATURA

Temperatura ( °C )	Tensão de es- coamento ( MPa)	Resistência a tração (MPa)	Alongamento em 50 mm ( % )
24	117,2	124,1	20
149	82,7	89,6	22
204	48,3	65,5	25
260	17,2	27,6	75
316	10,3	17,2	80
371	6,9	13,8	85

TABELA 2 24- LIMITES DA COMPOSIÇÃO QUÍMICA DO ALUMÍNIO 1100

Componentes	Teor ( % )
Al (mín)	99,0
Fe + Si (máx)	1,0
Cu (máx)	0,2
Mn (máx)	0,05
Zn (máx)	0,10
Outros*	
- Total (máx)	0,15
* O teor de cada componente não deve ultrapassar 0,05%	

### 2 4 3 Compatibilidade entre o Alumínio e o Urânio

Há diversos fatores importantes que estão ligados à interação entre o alumínio e o urânio, entre os quais, a sua integração no elemento combustível, a capacidade de suportar as mudanças dimensionais e a garantia da condutividade térmica na interface. A resistência à corrosão, é muito importante para assegurar que uma possível falha do encamisamento não seja catastrófica. A interdifusão entre o urânio e o alumínio afeta bastante esse aspecto, pois pode facilitar a formação de uma camada intermediária de baixa resistência ao ataque corrosivo. A ligação do urânio e do alumínio por meio de um eutectoide (Al-Si, p ex ), como barreira para a interdifusão, pode melhorar a resistência à corrosão e também a condução de calor / 27 , 37 , 43 /

### 2 5- Refrigerante

Para que o refrigerante seja eficiente, o mesmo deve proporcionar um elevado coeficiente convectivo de transferência de calor e uma grande capacidade térmica específica, nas condições de operação do reator. Se o coeficiente de película é elevado, a superfície de troca de calor não necessita ser muito extensa e é possível utilizar um fluxo de refrigerante relativamente pequeno, e, conseqüentemente, uma potência de bombeamento não muito elevada.

Para uma determinada vazão volumétrica do refrigerante e uma dada seção de escoamento, o coeficiente convectivo é tanto maior, quanto maiores forem a condutibilidade térmica, a densidade e a capacidade térmica do fluido, e inversamente, quanto menos viscoso for o refrigerante. A água comum e a água pesada satisfazem razoavelmente essas considerações térmicas e de mecânica dos fluidos.

Os gases se caracterizam por sua baixa condutibilidade térmica e densidade, o que torna necessária a operação em alta pressão. Deve-se também utilizar elevadas vazões volumétricas, levando a grandes potências de bombeamento.

A capacidade térmica,  $\rho C_p$ , deve ser grande, também, para que a variação média de temperatura ao longo dos elementos de combustível não seja excessiva, amenizando o problema das tensões térmicas. Na Tabela 2.25 são apresentadas algumas propriedades importantes da água pesada em função da temperatura.

Apesar da condutibilidade térmica da água não ser elevada, a mesma possui um calor específico significativo, tem viscosidade relativamente baixa e é bombeada com facilidade. A potência de bombeamento é aproximadamente dez vezes menor do que a necessária para a obtenção da mesma taxa de remoção de calor com gás pressurizado a 10 atm.

A utilização de água leve como refrigerante apresenta o inconveniente de sua grande seção de choque de captura de nêutrons. No caso de reatores de pesquisa moderados a água pesada, a quantidade de refrigerante é bem inferior à do moderador, mas em casos onde a economia de nêutrons é importante, justifica-se o uso de água pesada também como refrigerante.

As características químicas do  $H_2O$  e  $D_2O$  são basicamente idênticas e as físicas são bastante próximas. Assim, a água pesada e a leve tem ação corrosiva considerável sobre os metais e seu ponto de ebulição é relativamente baixo à pressão ambiente.

Em reatores de potência, as temperaturas de operação são muito superiores à do ponto de ebulição da água na

TABELA 2 25- PROPRIEDADES FÍSICAS DA ÁGUA PESADA

Temperatura ( °C )	Massa específica - Água saturada-		Viscosidade dinâmica - Água saturada -		Condutibilidade têrmica - em 1 Atm -		Calor específico - em 1 Atm - Cp(cal/g °C )
	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\frac{\rho_{D_2O}}{\rho_{H_2O}}$	$\mu$ (Centipoise)	$\frac{\mu_{D_2O}}{\mu_{H_2O}}$	k(W/cm°C )	$\frac{k_{D_2O}}{k_{H_2O}}$	
20	1,1054	1,1079	1,260	1,23	0,00578	0,968	1,006
30	1,1032	1,1080	0,969	1,21	0,00595	0,968	1,005
40	1,0999	1,1085	0,798	-	0,00607	0,967	1,004
50	1,0957	1,1090	0,659	-	0,00620	0,967	1,004
60	1,0906	1,1092	0,552	1,18	0,00632	0,968	-
70	1,0847	1,1093	0,480	-	-	-	-



pressão atmosférica. Nessas condições, deve-se trabalhar a pressões bastante elevadas, tornando obrigatório o uso de vasos de pressão que suportem os esforços correspondentes. A essas temperaturas, a água, mesmo desmineralizada e livre de oxigênio, é muito corrosiva.

No caso em estudo, todavia, a temperatura de mistura do refrigerante não ultrapassa 60°C, podendo-se operar em pressões muito próximas da atmosférica. Além disso, em reatores de pesquisa do tipo abordado neste trabalho, tanto os problemas de corrosão são muito menos sérios, como também, não são necessários vasos de alta pressão.

Com o uso da água como refrigerante, deve-se considerar a emissão de raios gama e de nêutrons, como resultado da radioatividade induzida. Os efeitos da radiação podem ser parcialmente reduzidos por meio da remoção das impurezas iônicas, e no caso da decomposição ser considerável, pode-se promover a recombinação dos gases formados.

Embora a reação (n,p) dos nêutrons rápidos com o isótopo O-16 produza N-17, emissor de raios  $\gamma$  de energia bastante alta, sua meia-vida de 7,5 segundos é curta o suficiente para que o mesmo não cause sérios problemas de ativação. Na Tabela 2.26 são apresentados alguns dados de interesse para a avaliação dos problemas de radioatividade induzida na água, incluindo informações sobre a ativação de impurezas típicas / 21, 27, 39, /

## 2.6 Componentes

### 2.6.1- O Elemento Combustível

Os elementos combustíveis deverão ser colocados em

TABELA 2 26 - DADOS SOBRE ATIVIDADES INDUZIDAS POR NÊUTRONS NO REFRIGERANTE ( ÁGUA PESADA)

Nuclídeo Alvo	Abundância Isotópica ( % )	Secção de Choque de Ativação (barns) (b)	Reação	Nuclídeos Radioativos		
				Nuclídeos	Meia-vida	Radiações (MeV)
H- 2	99,75 (a)	$0,57 \cdot 10^{-3}$	(n,γ)	H- 3	12,4 anos	$\beta^- (0,018)$
O-16	99,8	$2 \cdot 10^{-5}$ (c)	(n,p)	N-16	7,5 s	$\beta^- (10,3/4,3/3,8), \gamma (6,0/6,1/7,1)$
O-17	0,039	$5 \cdot 10^{-6}$ (c)	(n,p)	N-17	4,1 s	$\beta^- (3,7), n(-1)$
O-18	0,204	$2 \cdot 10^{-4}$	(n,γ)	O-19	29 s	$\beta^- (4,5/2,9), \gamma (1,6)$
Na-23	100	0,53	(n,γ)	Na-24	15 h	$\beta^- (1,4), \gamma (1,38/2,75)$
K-41	6,8	1,15	(n,γ)	K -42	12,5h	$\beta^- (3,58/2,04), \gamma (1,51)$

(a) abundância isotópica no reator

(b) secções de choque para nêutrons de 2200 m/s

(c) secções de choque médias no espectro de fissão

tubos -guia de alumínio, que separam completamente o refrigerante e o moderador. A parte superior dos tubos-guia deve ser feita de modo a possibilitar o alojamento de instrumentos de medida e monitoração. A parte inferior deve ser projetada de forma a distribuir a água de refrigeração que entra pela base do reator, facilitando a formação do perfil de escoamento ao longo da câmara anular de resfriamento. Pode-se dotar o elemento de aletas longitudinais espaçadas em intervalos de 120°.

Normalmente, os elementos combustíveis são compostos por várias partes, montadas firmemente para compor o elemento, o que facilita a fabricação. A extremidade superior do elemento é dotada de rosca para acoplamento de uma peça de alumínio que é, por sua vez, rosqueada ao tubo-guia por meio de um adaptador interposto.

O bocal é rosqueado ao conector inferior de alumínio e soldado ao elemento da mesma forma que o adaptador superior. As peças de alumínio nas extremidades do elemento são também soldadas às respectivas extremidades do elemento combustível. (Ver Figura 3.5)

A presença de uma camada metálica intermediária (Ni, Al-Si, Zn-Sn) entre o urânio e o alumínio é conveniente para evitar a corrosão catastrófica do elemento no caso de falha do revestimento, com penetração de água entre o alumínio e o combustível, bem como para aumentar a condução térmica e impedir a interdifusão entre o urânio e o alumínio.

As propriedades do elemento e dos seus componentes devem ser testadas antes de sua colocação no reator. Deve-se verificar a pureza da liga de urânio empregada e também do próprio alumínio. A estrutura de grãos finos pode ser verificada por meio de ultrassom e a presença de falhas através de

análises radiográficas. O ultra-som é também utilizado para o teste da integridade da camada metálica entre o revestimento e o combustível. Pode-se verificar se o revestimento é ou não hermético por meio da espectrometria de massa do hélio.

Quanto ao desempenho, um parâmetro importante é a taxa de queima ("burnup"), que fornece a quantidade de combustível consumida (ou energia produzida) até o elemento ser retirado do reator.

Vários fatores determinam a taxa de queima sendo que um dos mais importantes é o efeito da irradiação, a qual gera mudanças dimensionais e danos físicos, tanto no combustível quanto no revestimento. No nosso caso, em que as temperaturas não são muito elevadas, a taxa de queima não é tão afetada pelos danos da radiação e a perda líquida de reatividade devida ao consumo de material físsil, a acumulação de produtos de fissão e a produção de isótopos pesados é que determina o tempo de vida dos elementos combustíveis. Dessa forma, já no projeto do reator é previsto um excesso de reatividade compatível com uma taxa de queima razoável, que, no caso em consideração, deve girar em torno de 2000MWD/T /27, 37/

#### 2.6.2- Barras de Controle

O controle da reatividade é obtido por meio da inserção ou retirada de materiais absorvedores de nêutrons no cerne do reator.

A reatividade controlada pelas barras de controle deve possibilitar a obtenção da criticalidade, partindo-se com o reator desligado e mantendo-o crítico no nível desejado de potência. O reator deve permanecer crítico após as mudanças de temperatura, a formação de Xe-135 e Sm-149, o consumo de material físsil e a introdução de materiais para irradiação.

INSTITUTO DE RECURSOS HUMANOS  
E NUCLEARES

Além disso, devem ser levados em conta, um excedente para assegurar o desligamento do reator e uma reserva para compensar possíveis erros nos cálculos celulares e na efetividade das barras de controle

Com a queima do material absorvedor ao longo do funcionamento do reator, verifica-se uma diminuição na efetividade das barras. O efeito de acumulação do Xenônio no período posterior ao desligamento do reator deve também ser considerado

As barras de controle, além de possibilitar o controle do nível de potência em que opera o reator, são também usadas para garantir a segurança da operação. Em caso de acidente, é importante a inserção rápida das barras absorvedoras, o que justifica a colocação do mecanismo de acionamento na parte superior do cerne e o uso do sistema magnético de sustentação

As três categorias principais de barras de controle, de nosso interesse, são: a) Barras de Segurança - controlam uma reatividade suficiente para desligar o reator, sendo as primeiras a serem retiradas após os desligamentos temporários. No período em que o reator está desligado, são mantidas fora do cerne, garantido a segurança no caso eventual de se atingir a criticalidade acidentalmente, b) Barras de Controle Grossoeiro - são usadas na partida para a obtenção da criticalidade e para a elevação da potência ao nível desejado, c) Barras de Controle Fino - são em pequeno número e, têm a função de produzir pequenas variações de reatividade durante a operação do reator, compensando as variações de reatividade, sem alterar o formato axial do fluxo

Os materiais usados em barras de controle devem suportar condições severas de trabalho. A absorção de nêutrons e a exposição a outras radiações não devem resultar em

mudanças dimensionais, na degradação de suas propriedades mecânicas ou na perda da resistência à corrosão. Devido à geração de calor no interior da barra, resultante das reações nucleares, é interessante uma boa condutibilidade térmica. Na Tabela 2.27 são apresentadas as propriedades nucleares de alguns materiais usados em barras de controle.

O cádmio pode ser usado com segurança em reatores de baixa temperatura, já que seu ponto de fusão é de 321°C. O metal é bastante dútil, podendo ser usinado com facilidade. A sua resistência à corrosão, entretanto, não é muito boa, devendo as barras de cádmio serem revestidas por alumínio ou aço inoxidável / 27, 40 /

TABELA 2 27- PROPRIEDADES FÍSICAS DE ALGUNS MATERIAIS DE CONTROLE

Elemento	Número de massa dos isótopos absorvedores	Abundância isotópica ( % )	Secção de choque - térmica - (barns)	Secção de choque macroscópica - térmica - (cm <sup>-1</sup> )	Ressonâncias Principais	
					Energia (eV )	Secção de Choque (barns )
Prata			62	3,64		
	107	51,9	30		16,6	630
	109	48,1	84		5,12	12500
Cádmio			2250	118	0,18	7200
	113	12,3	20800			
Índio			190	7,26		
	113	4,2	58		1,46	30000
	115	95,8	197			
Háfnio			105	4,71		
	177	18,4	380		2,36	6000
	178	27,1	75		7,80	10000
	179	13,8	65		5,69	1100
	180	35,4	13		73,9	139

### 3 PARÂMETROS DO PROJETO NEUTRÔNICO E TERMOHIDRÁULICO

#### 3.1 Célula Unitária

Utilizou-se a clássica aproximação de Wigner Seitz nos cálculos neutrônicos celulares, ou seja, a célula unitária foi substituída por uma célula cilíndrica de área equivalente, com reflexão isotrópica na fronteira. Empregando o programa de computação HAMMER, o reator é representado por um conjunto infinito de tais células. O programa HAMMER é um dos programas de computação mais conhecidos na literatura de engenharia nuclear e amplamente usado em cálculos de parâmetros neutrônicos para geração das constantes de grupo / 3, 68 /

Estes cálculos têm como objetivo a verificação da viabilidade neutrônica dos materiais escolhidos e a definição das dimensões básicas da célula unitária, convenientes para o caso em estudo.

É apresentado na Figura 3.1, um esquema da célula unitária e suas diversas regiões. Na região 1 localiza-se o combustível, na região 2, o material de encamisamento do elemento, na região 3, o refrigerante, na região 4, a parede do canal de resfriamento e na região 5, o moderador.

#### 3.2 O Formato do Elemento Combustível

A forma do elemento combustível influencia no desempenho neutrônico e termohidráulico do reator, sendo as questões ligadas à tecnologia de fabricação também importantes.



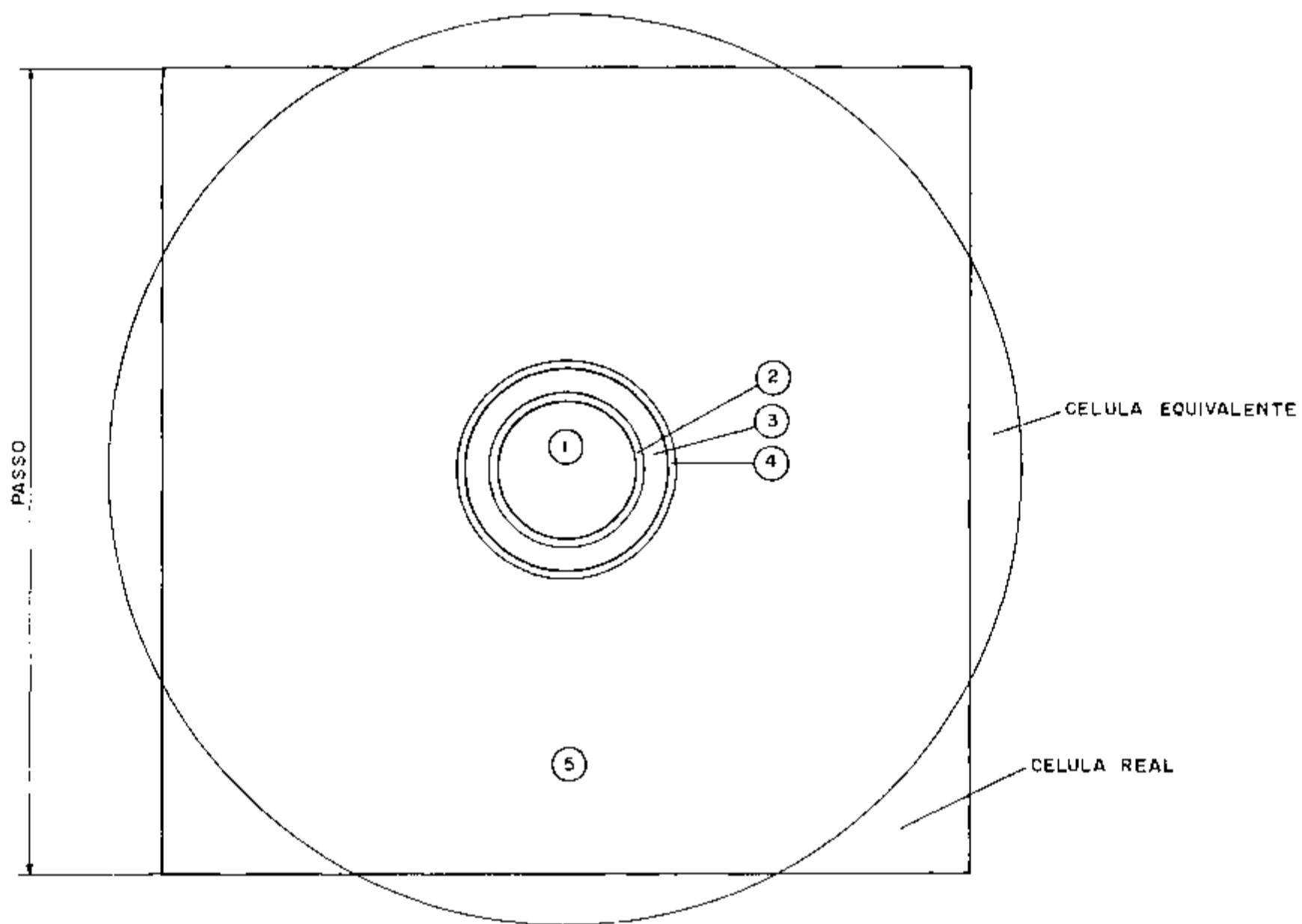


FIGURA 3 1 - CELULA UNITARIA REAL E EQUIVALENTE

As duas geometrias mais interessantes para o elemento combustível são a cilíndrica maciça, e a cilíndrica de secção anular a qual possibilita resfriamento mais eficaz

Utilizando a água pesada como refrigerante, o valor de  $K_{\infty}$  para o cilindro maciço é superior ao obtido com o cilindro de secção anular. Nesse elemento, a presença de material moderador no interior do combustível, acentuando a moderação, causa um aumento da captura de nêutrons epitérmicos por parte do U-238. A integral de ressonância sofre um aumento superior a 10%, que não é compensado pelo aumento do fator de utilização térmica.

Os principais fatores envolvidos na variação geométrica do elemento são a absorção de ressonância - devido à variação da razão entre a superfície externa e a massa de combustível - e a utilização térmica - devido à variação da depressão do fluxo neutrônico no interior do combustível.

No nosso caso, o aspecto da remoção do calor não é crítico e dessa forma escolhemos a forma cilíndrica maciça para o elemento de combustível, que além de tudo é de fabricação bem mais simples e barata.

### 3.3 Determinação das Dimensões da Célula Unitária

O cerne do reator é composto basicamente por um conjunto de células unitárias idênticas, formando uma rede, neste caso, quadrada. As dimensões mais importantes a serem definidas são o passo da rede e o diâmetro da barra de combustível de urânio natural metálico.

A fim de verificar a influência do passo e do diâmetro da barra de combustível sobre a constante de multiplicação infinita ( $K_{\infty}$ ) foi construído o gráfico da Figura 3.2

O valor de  $K_{\infty}$  foi calculado para três diâmetros da barra de combustível: 25, 30 e 35mm. O passo da célula unitária foi considerado no intervalo entre 14 e 34cm. As temperaturas consideradas foram 300°C para o combustível, 100°C para o encamisamento e 60°C para o refrigerante e moderador. Os cálculos foram feitos por meio do programa HAMPER, considerando-se o reator no início do funcionamento.

Os valores máximos de  $K_{\infty}$  para cada diâmetro foram obtidos com os passos indicados na Tabela 3.1

Diâmetro do Combustível (mm)	Passo (cm)	Máximo $K_{\infty}$
25,0	24,0	1,224
30,0	26,0	1,225
35,0	28,0	1,222

TABELA 3.1- MÁXIMO  $K_{\infty}$  EM FUNÇÃO DO PASSO E DO DIÂMETRO DO COMBUSTÍVEL

Além do comportamento do  $K_{\infty}$ , devemos também, na escolha do diâmetro da barra e do passo unitário, levar em consideração a potência específica exigida do combustível. A potência específica máxima que pode ser obtida com o urânio natural metálico é cerca de 6 MW/t, que é ditada pelos limites de danos de radiação. Em reatores de pesquisa de urânio natural e água pesada, no entanto, trabalha-se com um valor médio em torno de 2MW/t. A definição de uma potência específica relativamente baixa é interessante para aumentar

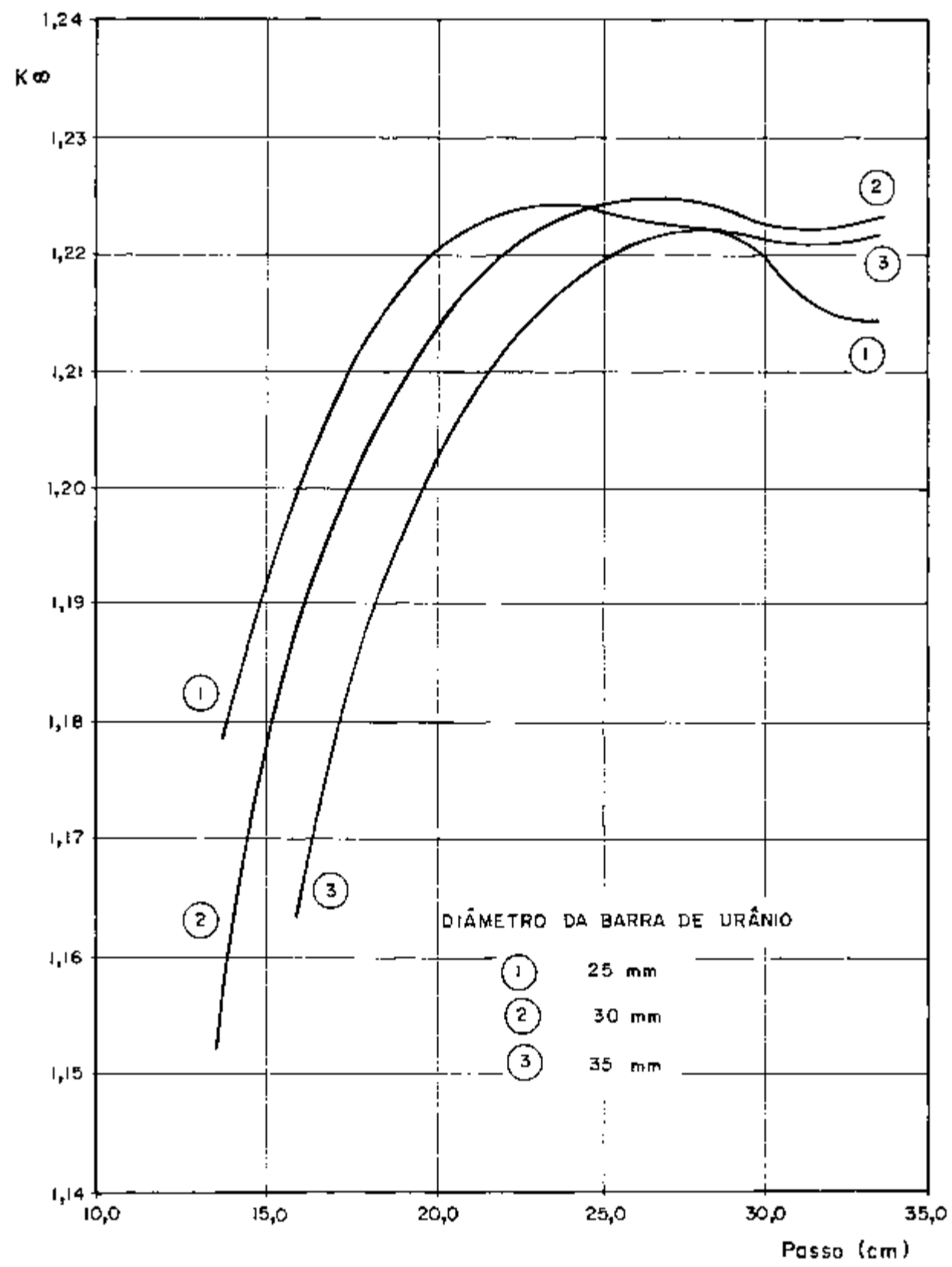


FIGURA 3 2 - VARIACÃO DO  $K_{\infty}$  EM FUNÇÃO DO PASSO DA CELULA E DO DIÂMETRO DA BARRA DE URÂNIO METÁLICO

a duração do combustível, tornando as recargas menos frequentes, além de proporcionar maior flexibilidade na operação do reator / 10, 32, 61, 70/

A potência específica média foi calculada, como o  $K_{\infty}$ , para diversos valores do diâmetro da barra e do passo unitário, construindo-se o gráfico da Figura 3.3. Para os pontos indicados no gráfico por  $P_1$ ,  $P_2$  e  $P_3$  as potências específicas obtidas estão na Tabela 3.2

O fluxo térmico médio na superfície do combustível,  $\bar{q}_c''$ , é também um parâmetro significativo, pois a diferença média de temperatura entre o centro do combustível e sua superfície é diretamente proporcional a  $(\bar{q}_c'' D_c)$ , pois

$$t_m - t_c = \frac{1}{4K_c} \bar{q}_c'' D_c$$

onde  $D_c$  diâmetro da barra de combustível (cm)  
 $K_c$  condutibilidade térmica do combustível (W/cm°C)

Calculou-se o fluxo térmico médio para o mesmo conjunto de passos e diâmetros usado na obtenção de  $K_{\infty}$  e da potência específica média, construindo-se o gráfico da Figura 3.4. Os valores de  $\bar{q}_c''$  nos pontos  $F_1$ ,  $F_2$  e  $F_3$  constam da Tabela 3.2. Nessa Tabela temos os parâmetros de comparação entre três combinações de passo unitário e diâmetro do combustível.

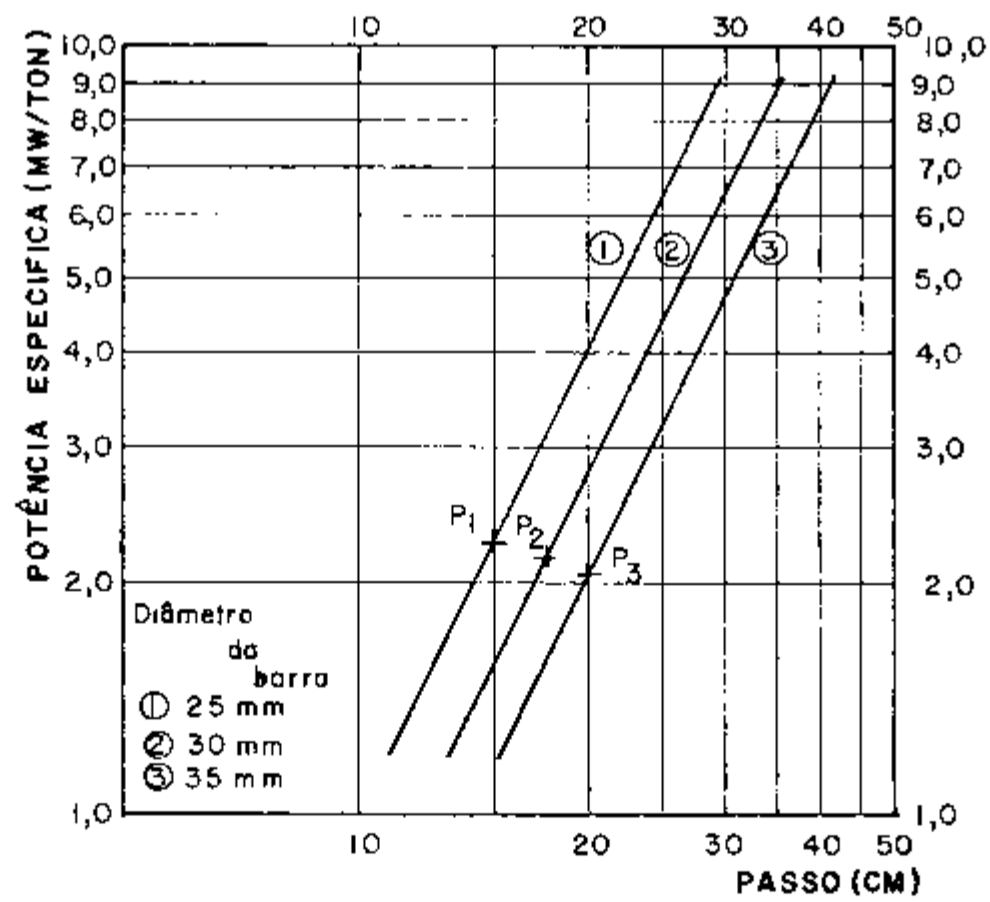


FIGURA 3.3 - POTÊNCIA ESPECÍFICA MÉDIA FORNECIDA PELO COMBUSTÍVEL EM FUNÇÃO DO DIÂMETRO DA BARRA E DO PASSO UNITÁRIO

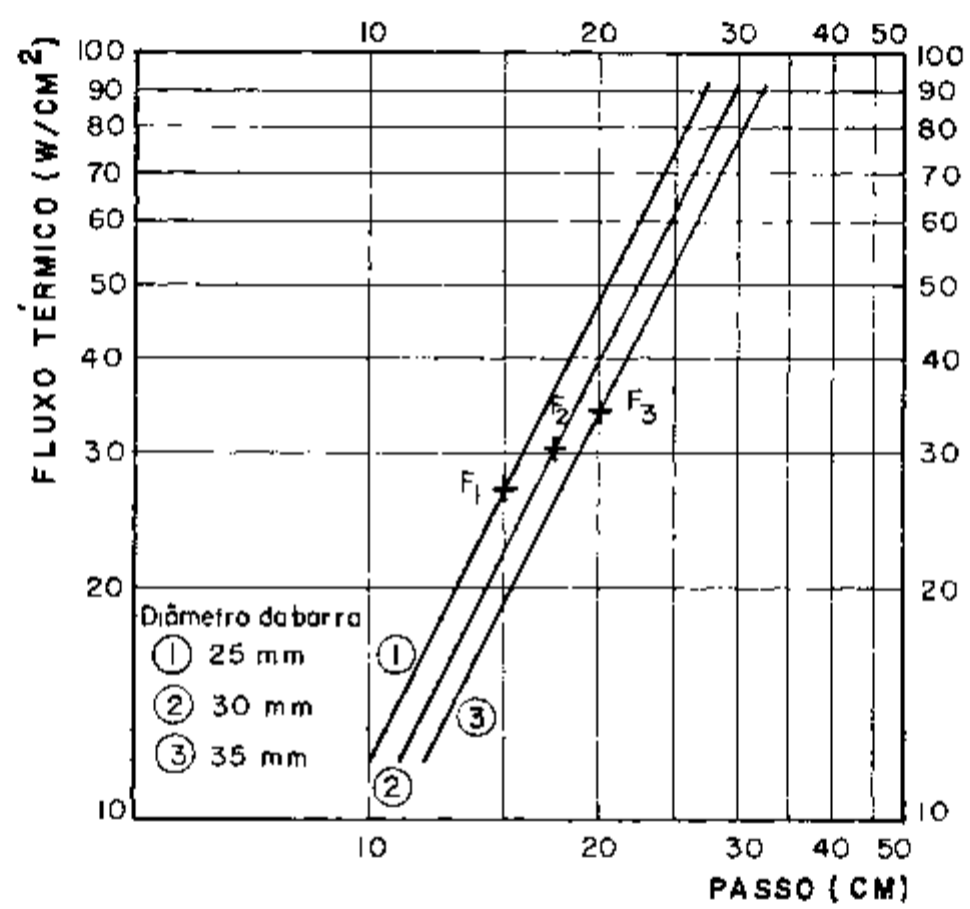


FIGURA. 3 4 - FLUXO TÉRMICO MÉDIO NA SUPERFÍCIE DO COMBUSTÍVEL EM FUNÇÃO DO DIÂMETRO DA BARRA E DO PASSO UNITÁRIO

TABELA 3 2- PARÂMETROS SIGNIFICATIVOS NA DEFINIÇÃO DAS DIMENSÕES BÁSICAS DA CÉLULA UNITÁRIA

Caso	$D_c$ (mm)	Passo (cm)	$K_{\infty}$	Potência Específica média (MW/ton)	$\bar{q}_c''$ (W/cm <sup>2</sup> )	$\bar{q}_c'' D_c$ (W/cm)
1	25	15,0	1,194	$P_1$ 2,3	$F_1$ 27,0	67,5
2	30	17,5	1,202	$P_2$ 2,2	$F_2$ 30,7	92,1
3	35	20,0	1,203	$P_3$ 2,1	$F_3$ 34,3	120,1

Considerando os valores de  $K_{\infty}$  e da potência específica, concluímos que os arranjos 2 e 3 são os mais convenientes. Não obstante, no caso 3, teremos uma diferença média de temperatura entre o centro e a superfície do combustível 30% superior à do caso 2. Devido a esse fato, optou-se pelo segundo arranjo, ou seja diâmetro da barra de combustível, 30mm e passo unitário da célula quadrada, 17,5 cm. É necessário observar que a escolha final desses parâmetros seria o resultado de um trabalho exaustivo onde entrariam considerações de disponibilidade de materiais e custos de fabricação, o que está fora do escopo do presente trabalho. Contudo, é mister ressaltar que sob o ponto de vista neutrônico e térmico os valores aqui escolhidos servem perfeitamente como dados de referência e, portanto, aos objetivos desta dissertação.

Nos cálculos realizados para a obtenção desses parâmetros, a espessura da parede do canal de refrigerante e a do encamisamento de alumínio é de 1,5mm. A diferença entre os raios externo e interno da seção anular de resfriamento é de 5mm. As dimensões gerais do reator são expostas no item 3.6.

O canal de resfriamento foi dimensionado basicamente em função dos parâmetros termohidráulicos, levando em conta as temperaturas atingidas no elemento combustível e a perda de carga. Em relação aos aspectos neutrônicos, a espessura do ca



nal não exerce grande influência, já que o moderador e o refrigerante são constituídos pela água pesada

A espessura do material de revestimento do elemento e a da parede do canal de resfriamento foram definidas considerando-se basicamente a necessidade de assegurar a integridade do elemento combustível, em relação aos aspectos mecânicos e, principalmente, quanto à proteção do urânio metálico contra a corrosão. A fim de possibilitar a detecção de qualquer falha do elemento combustível, há em cada elemento uma tomada de amostragem do fluido refrigerante, a fim de que possam ser tomadas rapidamente as medidas de segurança para desligamento do reator e correção do problema. Na Figura 3.5 é apresentado um elemento combustível típico em corte, onde pode ser visto o canal anular de resfriamento e a tomada de amostragem.

Em decorrência das diferentes temperaturas do urânio metálico e do encamisamento de alumínio podem verificar-se expansões térmicas diferenciais que geram um iracionamento circunferencial do encamisamento. Contudo, as tensões desenvolvidas não são elevadas em demasia, considerando-se também a elevada ductilidade do alumínio como um fator que favorece a acomodação de pequenas deformações plásticas porventura verificadas.

#### 3.4 Efeitos da Temperatura

Foi avaliado o efeito da temperatura do combustível, moderador e refrigerante sobre o  $K_{\infty}$ , utilizando-se as opções de cálculo disponíveis no programa HAMMER. Os resultados obtidos estão na Tabela 3.3.

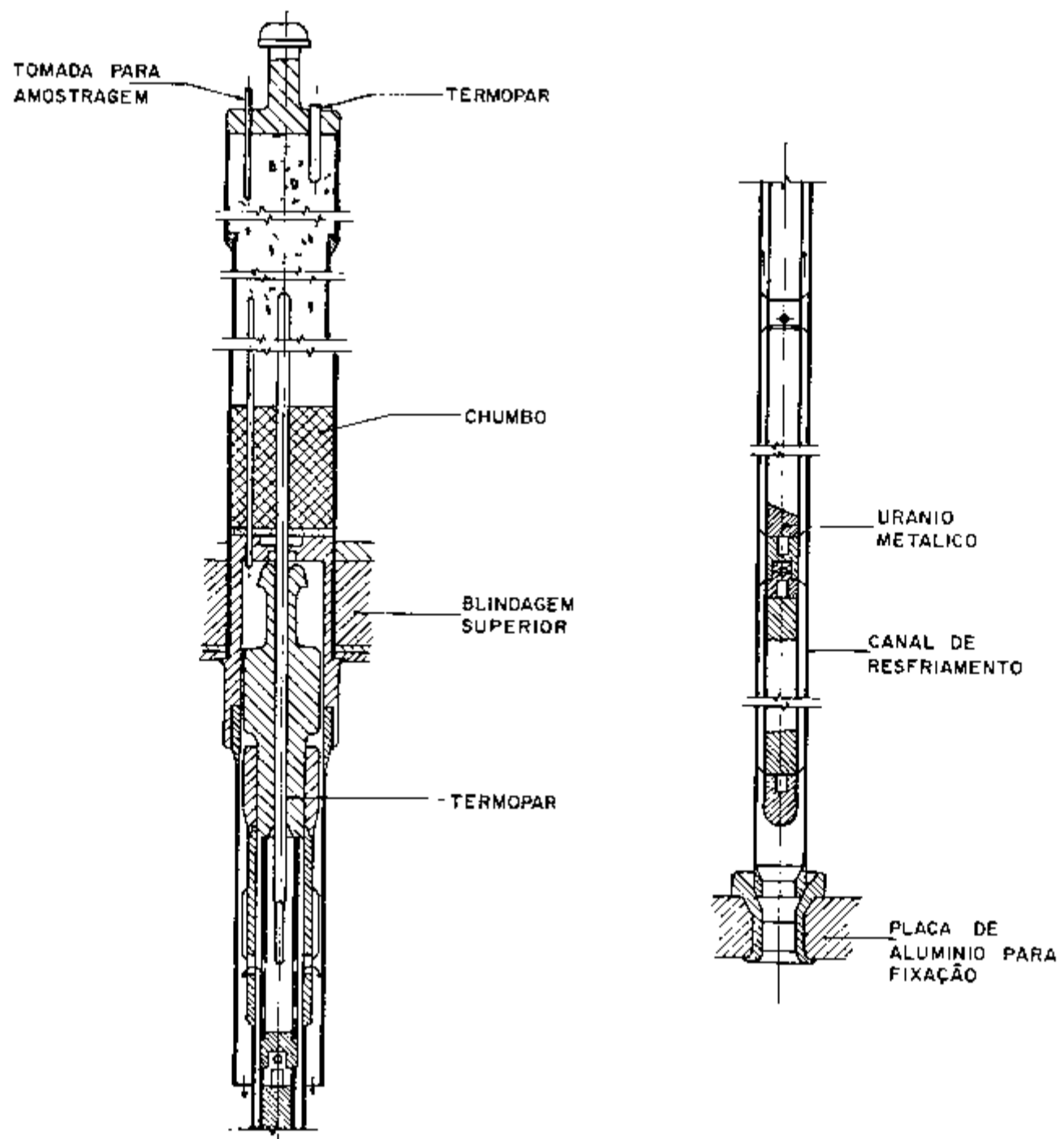


FIGURA 3 5 - ESQUEMA DO ELEMENTO COMBUSTIVEL

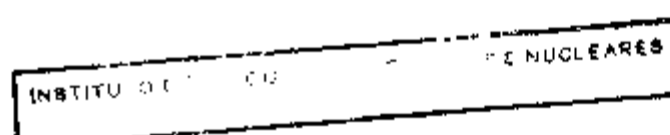
TABELA 3 3- EFEITO DA TEMPERATURA SOBRE O  $K_{\infty}$ 

Caso	Temperatura (°C)			$K_{\infty}$
	Combustível	Refrigerante	Moderador	
A	20	20	20	1,2078
B	300	20	20	1,2049
C	300	60	20	1,2017
D	300	60	60	1,2017

Entre os casos A e B, com o aumento da temperatura do combustível para 300°C tivemos uma queda de reatividade ( $\rho$ ) de 0,20%. Essa queda é devida ao aumento da integral de ressonância ao U-238 causado pelo efeito Doppler, que leva a um aumento da absorção de nêutrons por ressonância.

Entre os casos B e C, a temperatura do refrigerante aumentando de 20°C para 60°C, constatou-se uma queda de reatividade de 0,22%, devida principalmente à mudança do espectro de nêutrons térmicos na proximidade do combustível a 300°C, apesar da pequena alteração da temperatura do refrigerante. Esse aumento de temperatura em 40°C, não é suficiente para causar qualquer queda significativa da reatividade pela alteração das propriedades do moderador, como vemos por meio da comparação dos casos C e D.

Considerando a variação de temperatura entre o estado em 20°C e o estado de operação, a queda total da reatividade é de 0,43%, que é um valor relativamente pequeno. Em reatores de potência, essas quedas atingem valores bastante superiores, devido principalmente às altas temperaturas de operação.



Os coeficientes de temperatura relativos à reatividade são negativos, o que é importante para assegurar a estabilidade e segurança inerentes ao reator

### 3.5 Efeitos da Queima do Combustível

Com a operação do reator, observamos diversos efeitos importantes que se manifestam com a queima do combustível, como a produção de Xe-135 e Sm-149, a diminuição da concentração de U-235, a produção de material físsil, a diminuição da efetividade das barras de controle e a queima de algumas impurezas como o Boro e o Cádmio

Foi calculada a variação do  $K^*$  em função do tempo de funcionamento do reator, por meio do programa HAMMER, e não considerando os efeitos sobre as barras de controle e a queima de impurezas. Não foi considerado qualquer recarregamento de combustível. Na Figura 3.6 é apresentado o gráfico de  $K^*$  em função do tempo de queima. Mesmo após um período de queima de 1300 dias, o valor de  $K^*$  ainda atinge 1,13 e o de  $K_{ef}$ , 1,10.

Esse excesso de reatividade garante a possibilidade de irradiação de materiais inseridos no cerne do reator, além da realização de experiências que causem fugas ou a absorção de nêutrons.

### 3.6 Geometria do Reator

A densidade de potência em reatores deste tipo gira em torno de  $1,0 \text{ W/cm}^3$ , valor determinado basicamente pelos aspectos termo-hidráulicos do projeto.

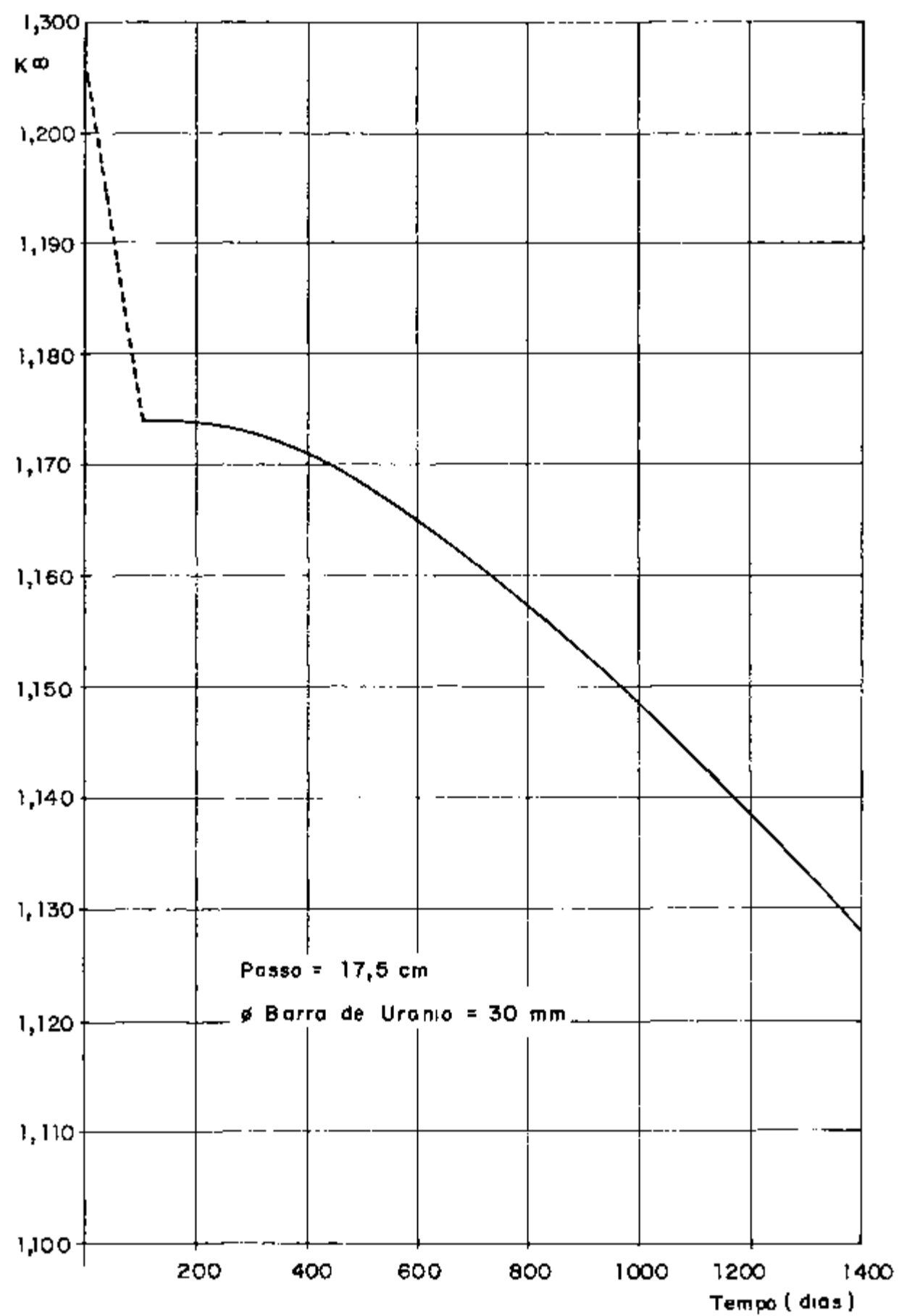


Fig 3 6 - Variação de  $K^\infty$  em função do tempo de queima

Em relação à economia de nêutrons e facilidade de construção, a geometria cilíndrica é a mais conveniente. A relação entre a altura e o diâmetro equivalentes para o melhor aproveitamento dos nêutrons deve ser tal que  $R/H$  seja próximo à 0,55.

Experiências semelhantes realizadas no exterior indicam que a potência de reatores com características semelhantes as deste projeto varia entre 10 e 40 MW. A escolha da potência do reator aqui proposto apresenta uma margem de flexibilidade bastante grande. Fundamentalmente, esta potência é definida pelo balanço entre o nível de investimento que se dispõe para construção do reator e o nível de produção de radioisótopos desejado para atender o mercado. Acontece que o mercado cresce continuamente e, portanto, inexiste uma linha de demarcação definindo o nível de produção desses radioisótopos. Por outro lado, as limitações de caráter técnico-constructivo podem ser contornadas quase sempre e, portanto, não são delimitantes.

Assim, o nível de investimento torna-se o fator preponderante na decisão sobre a potência. Contudo, mesmo aqui, não existe uma linha fixa. A economia de investimentos adquire certas conotações políticas e as decisões entram em terrenos externos à ação das considerações puramente técnicas. Nesse sentido, portanto, fixou-se arbitrariamente a potência em 20 MW. O custo deste reator se situaria bem abaixo de U\$ 70 milhões de dólares, que consideramos, também arbitrariamente, o limite superior para sua viabilização.

Mister se faz esclarecer, no entanto, que a finalidade desta dissertação é de tecer considerações técnicas sobre os parâmetros de construção de um reator, capaz de produzir radioisótopos excluindo a sua potência definitiva. O propósito é de detetar e analisar os pontos técnicos a serem considerados no seu projeto, uma vez definida sua potência.

Nesse sentido, a potência é uma variável relativamente bastante flexível como ousamos afirmar, no início desta discussão. O importante é a fixação de uma potência de referência que serviria, enfim, como ponto comparativo dos estudos detalhados de sensibilidade custo-benefício a serem feitos durante a fase de definição do projeto construtivo.

A potência de 20MW proporciona ao reator dimensões razoáveis sem elevar em demasia os investimentos necessários. Para essa potência, as dimensões básicas do cerne do reator foram definidas como sendo

Diâmetro	300 cm
Altura	300 cm

A relação entre o raio e a altura é aproximadamente igual a 0,55 por meio da utilização do refletor de água pesada e grafita. Com tais dimensões, o volume total do cerne do reator é  $21,21\text{m}^3$  e a densidade média de potência tem o valor de  $0,94\text{ W/cm}^3$ , perfeitamente de acordo com os valores usuais para esse tipo de reator.

### 3.7 Dimensões do Refletor

O uso de refletor é conveniente para a melhoria da economia de nêutrons, devido à diminuição das fugas.

O reator em estudo é do tipo tanque, o que facilita o uso do próprio moderador como primeiro refletor, no caso, a água pesada. Devido ao seu alto custo, esse primeiro refletor tem sua espessura naturalmente limitada, o que tornou interessante o emprego de grafita como segundo refletor radial e na parte inferior do reator. Na parte superior, julgou-se mais conveniente a não colocação do refletor de grafita a fim de facilitar o acesso ao cerne do reator.

No dimensionamento de um refletor deste tipo, de duas camadas e com assimetria axial, a utilização da teoria de dois grupos de energia para o tratamento exato do "refletor savings" é demasiadamente trabalhosa. Alguns autores empregam, parcialmente, a teoria de dois grupos em combinação com a teoria de um grupo, tornando o cálculo mais simples.

Neste caso, trata-se de estabelecer as dimensões do refletor de forma preliminar, para o que a teoria de um grupo é suficiente. Quando o "buckling" ( $B_c$ ) do reator sem refletor é, como nesta situação, relativamente pequeno, tem-se:

$$\delta \cong \frac{\bar{D}_c}{\bar{D}_R} L_{TR} \operatorname{tgh} \frac{a}{L_{TR}}$$

onde  $\bar{D}_c$  coeficiente médio de difusão para o cerne (cm)

$\bar{D}_R$  coeficiente médio de difusão para o refletor (cm)

$L_{TR}$  comprimento de difusão para o refletor (cm)

$a$  espessura do refletor (cm)

$\delta_r$  "Reflector Savings" (cm)

As dimensões definidas para o refletor foram  $d_R = 10$  cm,  $d_H = 20$  cm e  $g = 80$  cm, como indicado na Figura 3.7. Para esse refletor, foram obtidos os valores de  $\delta_R$  (radial) = 66 cm e  $\delta_H$  (axial) = 48 cm.

A distribuição do fluxo neutrônico térmico foi calculada para três reatores com o mesmo cerne e diferentes refletores. O cerne tem as dimensões  $H = 300$  cm e  $R = 150$  cm, como



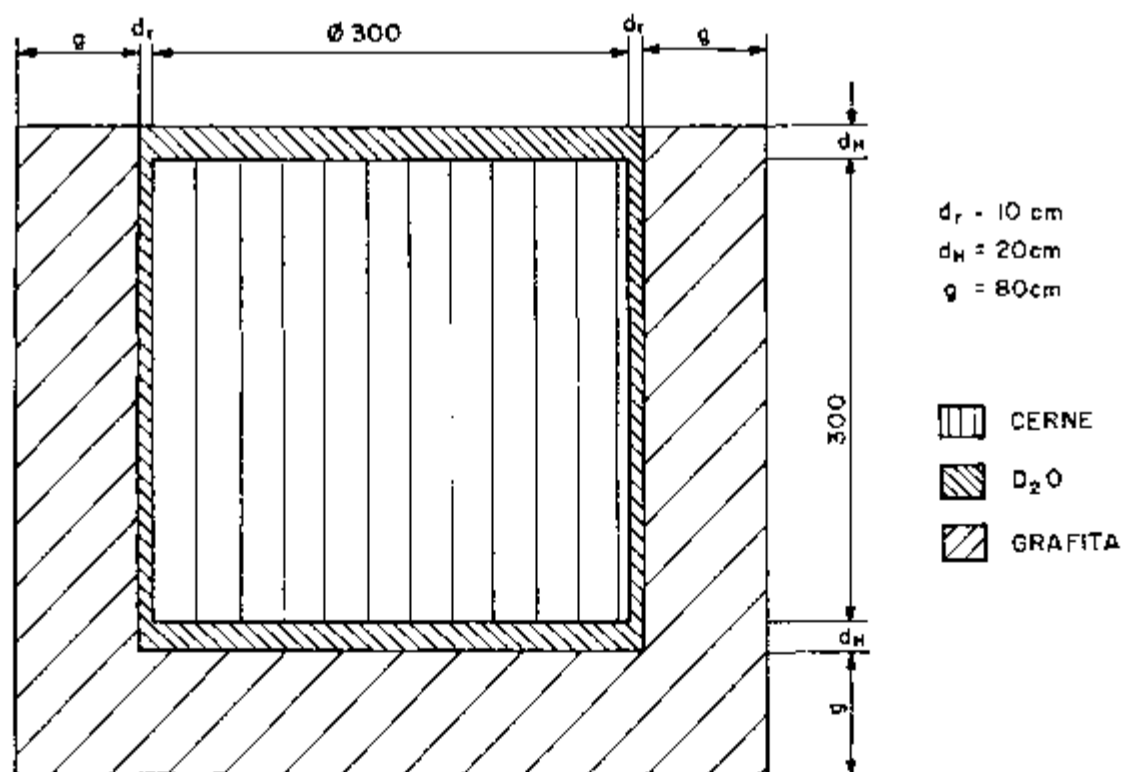


FIGURA 37 - DIMENSÕES BÁSICAS DO REATOR

indicado na Figura 3.7

No primeiro caso o reator é considerado sem refletor algum. No segundo caso, o reator é refletido apenas por água pesada, com  $d_H = 20$  cm e  $d_R = 10$  cm. No terceiro, o reator é refletido por água pesada e grafita, sendo as suas dimensões indicadas na Figura 3.7. A potência gerada pelo reator foi tomada como 20 MW.

Na Figura 3.8 é apresentada a distribuição radial do fluxo neutrônico térmico e na Figura 3.9 a distribuição axial para os três casos citados. Por meio desses gráficos pode-se avaliar os efeitos do refletor sobre o fluxo térmico no cerne do reator. A diminuição do "buckling", e portanto, da fuga de nêutrons térmicos, em (2) e (3) é o efeito mais evidente nas duas figuras.

A efetividade dos refletores em relação à diminuição da fuga de nêutrons é demonstrada por meio da Tabela 3.4 em que é apresentado o valor de  $K_{ef}$  para cada caso.

TABELA 3.4 - VARIAÇÃO DO  $K_{EF}$  COM O REFLETOR

Caso	(1)	(2)	(3)
$K_{ef}$	1,142	1,153	1,172
$K_{ef}/K_{\infty}$	0,950	0,960	0,975

Conclui-se que a probabilidade de não fuga para o reator refletido por água pesada e grafita é superior (2,6%) ao valor obtido para o reator sem refletor.

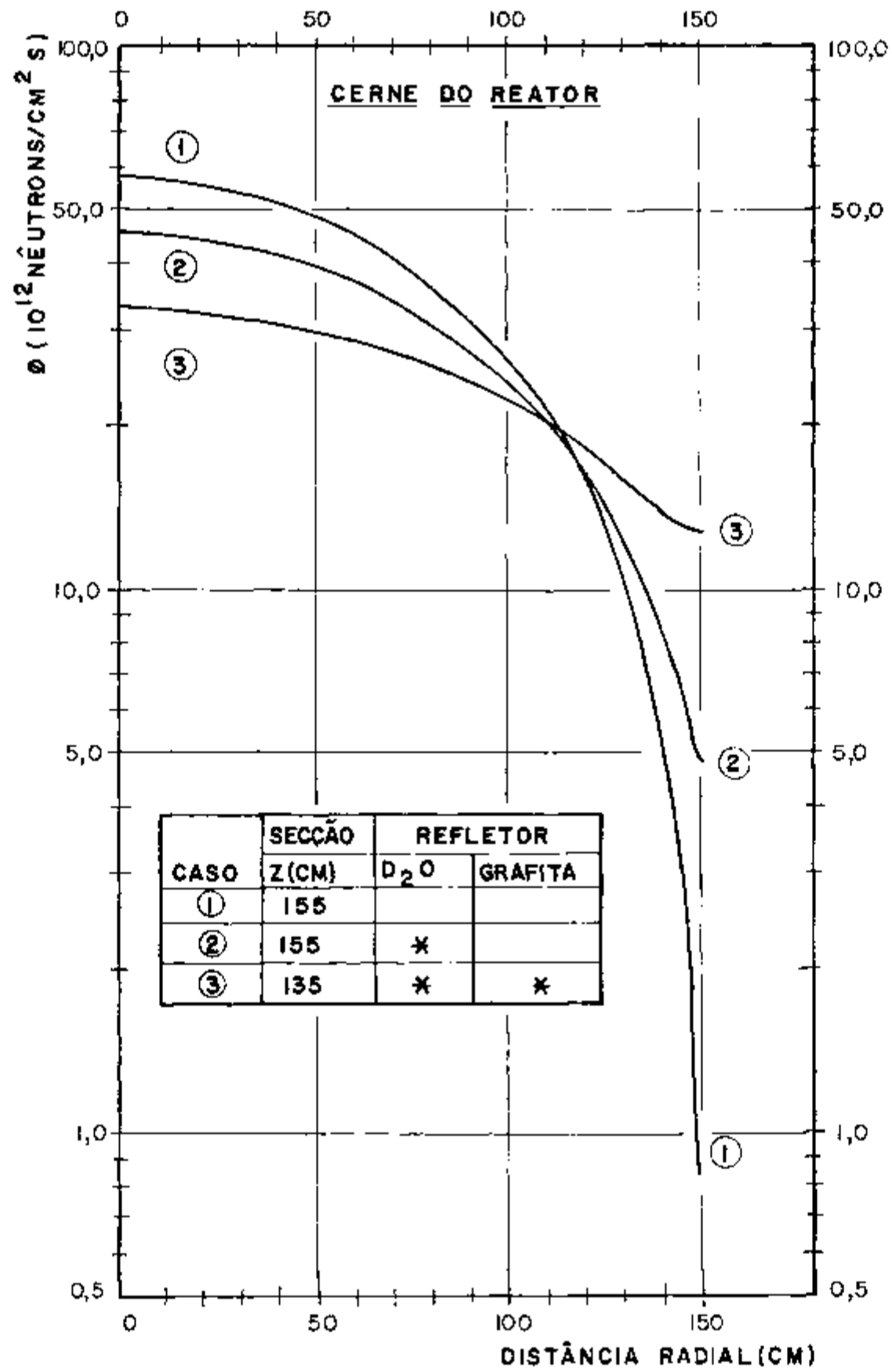


FIGURA 38 - DISTRIBUIÇÃO RADIAL DO FLUXO NEUTRÔNICO TÉRMICO (ATE 0,625 eV) NAS SEÇÕES DE MAIOR FLUXO, COM VARIAÇÕES DE REFLETOR

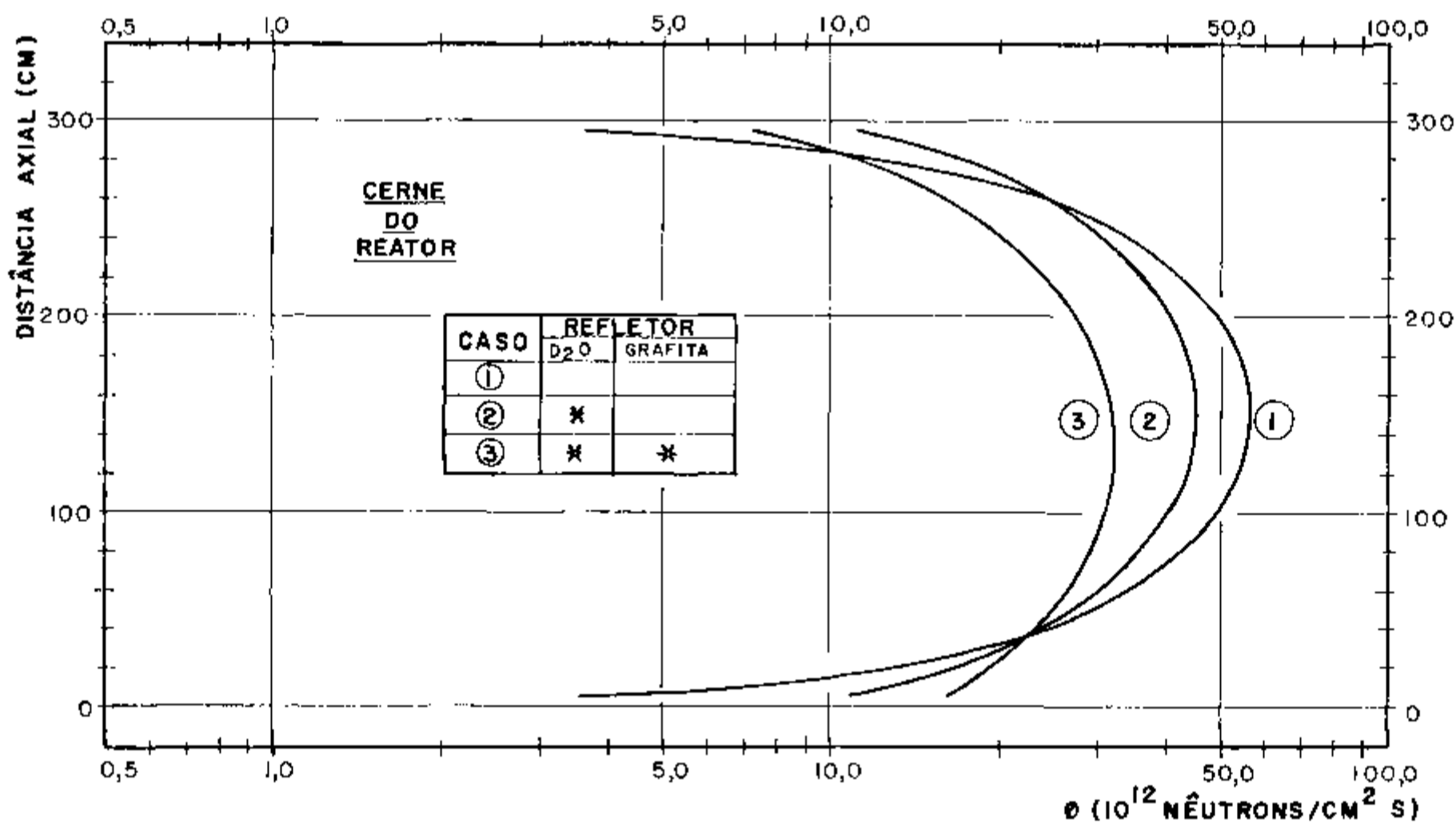


FIGURA 39 - DISTRIBUIÇÃO AXIAL DO FLUXO NEUTRÔNICO TÉRMICO (ATE 0,625 eV) NO CANAL MAIS QUENTE DO REATOR, COM VARIAÇÃO DE REFLETOR

### 3.8 Distribuição de Temperaturas

Num reator de pesquisa deste tipo, as temperaturas nos elementos combustíveis são bastante inferiores às correspondentes em reatores de potência. Dessa forma, não surgem problemas críticos de temperatura para a integridade dos materiais estruturais empregados. Apesar disso, julga-se importante a avaliação dessas temperaturas, principalmente no centro do elemento combustível.

A partir dos resultados obtidos por meio do programa CITATION / 22 / para a densidade de potência nos diversos pontos do reator, foi calculada a densidade linear de potência gerada no combustível para o canal mais quente e o mais frio do reator. Baseando-se nesses valores de densidade linear de potência, foi calculada, para os dois casos estudados, a distribuição de temperaturas no refrigerante, na superfície do encamisamento, na superfície do combustível e no centro do combustível. O modelo analítico empregado foi extremamente simples. Desprezou-se a condução do calor no sentido axial do elemento combustível. /21/

#### 3.8.1 Distribuição de Temperaturas no Refrigerante

A variação da temperatura do refrigerante é descrita por

$$t_r(z) = \frac{1}{mC_p} \int_0^z q'(z) dz + t_r(0) \quad (3.1)$$

onde

$t_r(z)$	temperatura do refrigerante para a altura $z$
$m$	fluxo em massa de refrigerante por canal de resfriamento
$C_p$	calor específico do refrigerante ( $p = \text{cte}$ )

$q'(z)$  densidade linear de potência na altura  $z$  do elemento de combustível

$t_r(o)$  temperatura do refrigerante na entrada

### 3 8 2 Distribuição de Temperaturas na Superfície do Encamisamento

A temperatura na superfície do encamisamento é obtida por

$$t_e(z) = \frac{1}{hC} q'(z) + t_r(z) \quad (32)$$

onde  $t_e(z)$  temperatura da superfície do encamisamento na altura  $z$

$h$  coeficiente médio de transmissão de calor por convecção

$C$  perímetro circunferencial do elemento de combustível  $C = 2\pi(R_c + e)$

$t_r(z)$  temperatura do refrigerante em  $z$

O coeficiente médio de película  $h$  foi calculado por meio da Expressão 3 3 relativa ao escoamento líquido em seções anulares

$$\frac{h}{CpG} r_f^{2/3} \left( \frac{\mu_p}{\mu} \right)^{0,14} = \frac{0,021(1 + 2,3 D_c/L)}{(D_e G / \mu_f)^{0,2}} \quad (33)$$

Os subscritos  $p$  e  $f$  indicam se as propriedades devem ser tomadas para as temperaturas da parede ou do filme ,

respectivamente As demais propriedades são tomadas em relação à temperatura de mistura do fluido Na expressão temos

$\nu$  viscosidade dinâmica do fluido  
 $P_r$  número de Prandtl =  $\frac{C_p \nu}{K}$ , onde K é a condutibilidade térmica do refrigerante

$G = \frac{m}{A_s}$  onde m é a vazão em massa do refrigerante por canal e  $A_s$  é a área da seção anular de escoamento

$D_e$  diâmetro equivalente de escoamento, com

$$D_e = 4 \frac{(\pi/4) (D_2^2 - D_1^2)}{\pi (D_2 + D_1)} = D_2 - D_1 \text{ com } D_1$$

e  $D_2$  como indicado na Figura 3 10

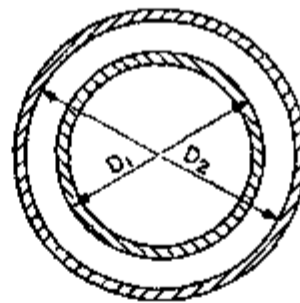


FIGURA 3 10 - SECCÃO TRANSVERSAL DO CANAL ANULAR

### 3 8 3 Distribuição de Temperaturas na Superfície do Combustível

A temperatura na superfície do combustível é obtida a partir de

$$t_c(z) = \left[ \ln\left(\frac{R_c + e}{R_c}\right) \right] \frac{q'(z)}{2\pi K_e} + t_e(z) \quad (34)$$

onde

- $t_c(z)$  temperatura da superfície do combustível na altura  $z$
- $R_c$  raio do combustível
- $e$  espessura do encamisamento
- $K_e$  condutibilidade térmica do encamisamento
- $q'(z)$  densidade linear de potência na altura  $z$  do elemento de combustível

### 3 8 4 Distribuição de Temperaturas no Centro do Combustível

A temperatura no centro do combustível é obtida por

$$t_m(z) = \frac{q'(z)}{4\pi K_c} + t_c(z) \quad (35)$$

onde

- $t_m(z)$  temperatura no centro do combustível em  $z$
- $K_c$  condutibilidade térmica do combustível
- $t_c(z)$  temperatura na superfície do combustível em  $z$



### 3 8 5 Cálculo das Distribuições de Temperatura

A distribuição homogênea de densidade de potência foi calculada por meio do programa CITATION, para o período inicial de funcionamento do reator. A distribuição radial é apresentada na Figura 3 11 para as secções superior e inferior do reator e para a secção de máxima densidade de potência. A distribuição axial está na Figura 3 12 para o canal mais quente e para o mais frio do reator.

A densidade linear de potência gerada no combustível foi obtida por meio da seguinte relação

$$q'(z) = q'_H(z) \frac{A_P}{A_C} \quad (3 6)$$

onde  $q'_H$  densidade de potência gerada na célula unitária homogênea por unidade de comprimento (z)

$A_P$  área da célula unitária quadrada

$A_C$  área da secção transversal do combustível de uma célula

A temperatura do refrigerante foi calculada, utilizando os valores de  $q'(z)$  calculados segundo a Expressão (3 6), por meio da Expressão (3 1), com

$$m = 1,97 \text{ kg/s}$$

$$t_r(0) = 40^\circ\text{C}$$

$$C_p = 4,179 \text{ KJ/kg}^\circ\text{C}$$

Com os resultados obtidos foram construídas as curvas (1) das Figuras 3 13 e 3 14 para o canal mais quente e mais frio do reator respectivamente.

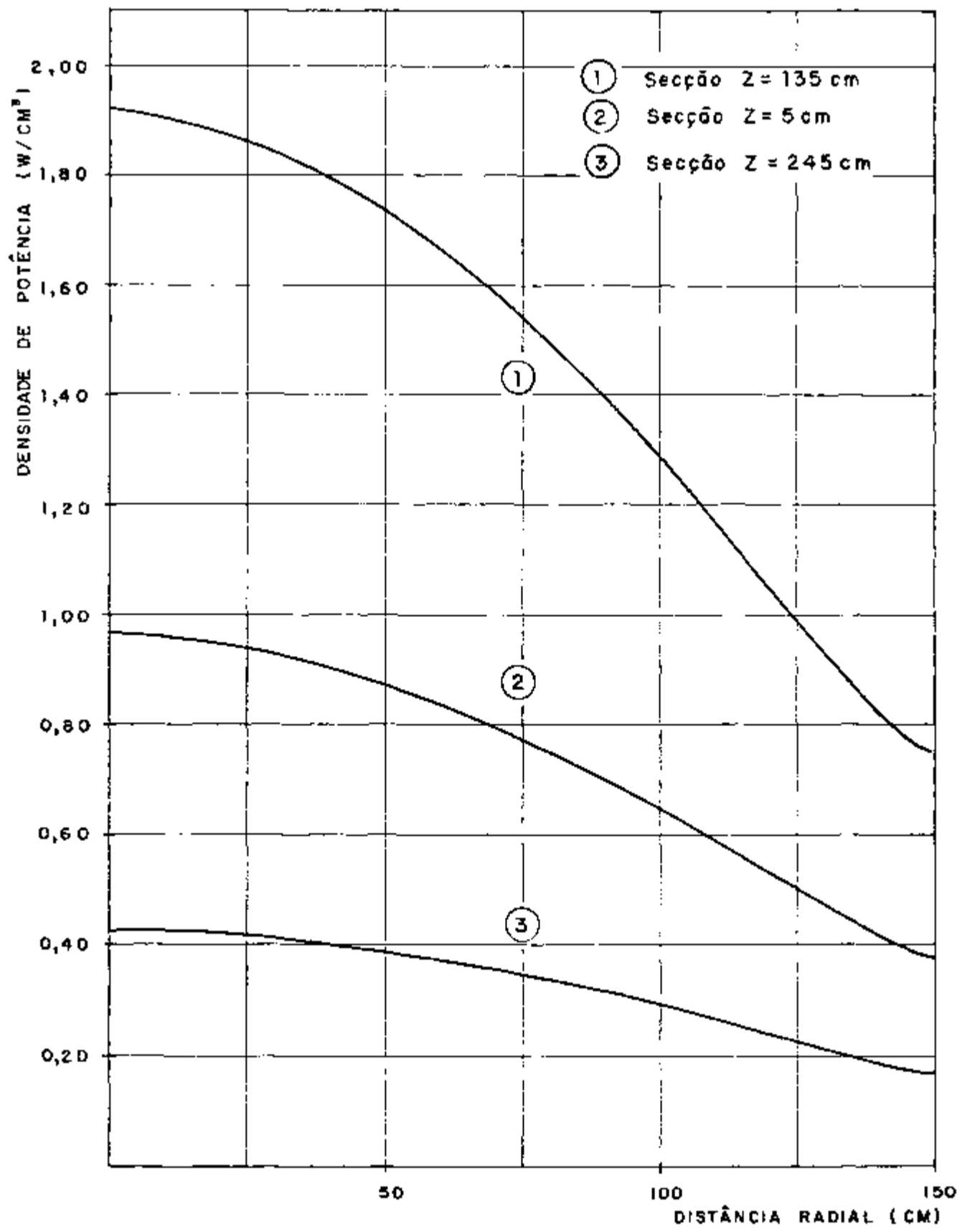


Figura 3 II - Distribuição radial de densidade de potência

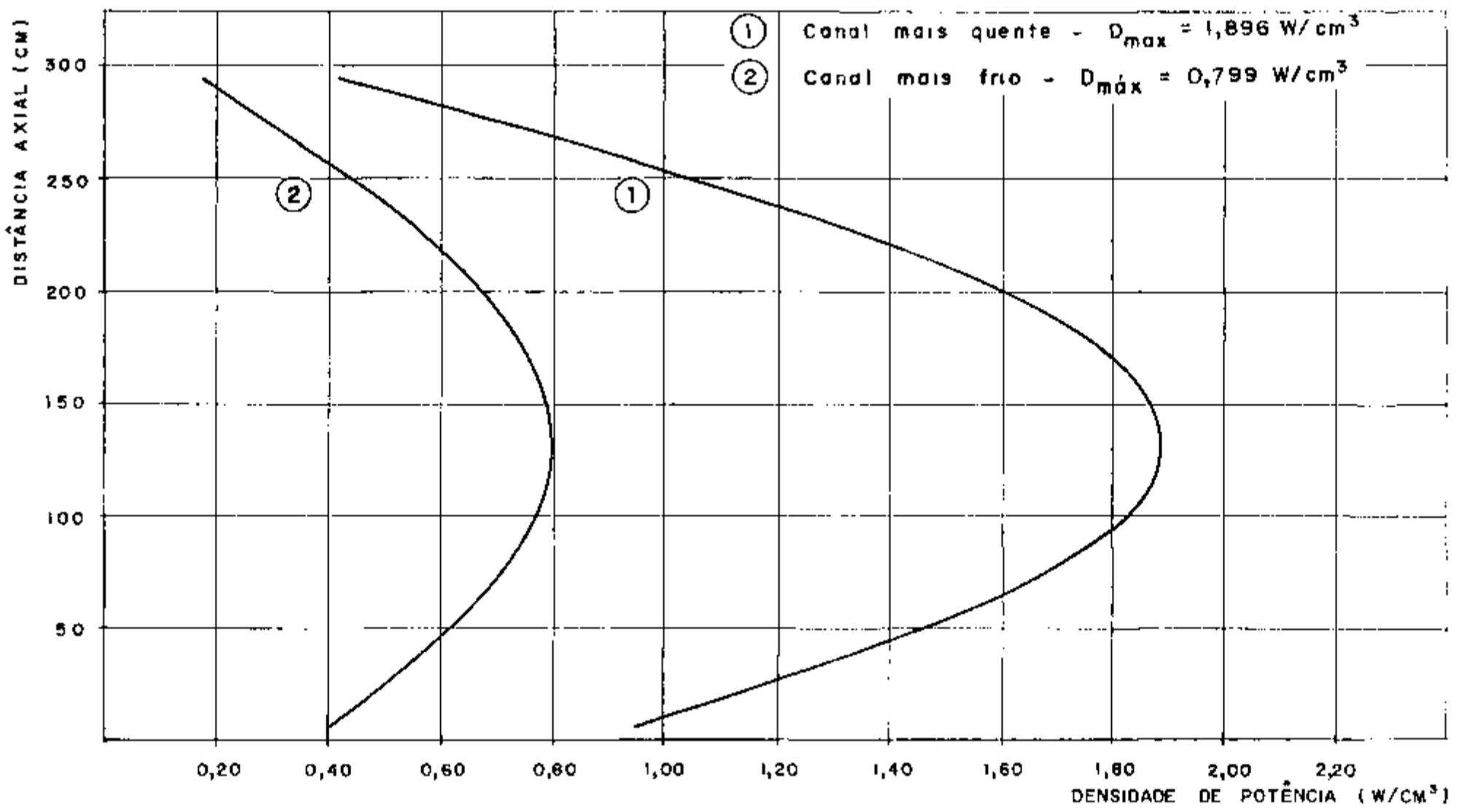


Figura 312 - Distribuição axial de densidade de potência

A temperatura na superfície do encamisamento foi obtida por meio da Expressão (3 2), com os valores de  $q'(z)$  e  $t_r(z)$  calculados e com o valor de  $h$  calculado pela Expressão (3 3) onde as propriedades da água pesada foram tomadas em 45°C, considerado um valor médio ao longo do canal e

$$\begin{aligned} L &= 300 \text{ cm} & R_c &= 1,50 \text{ cm} \\ D_e &= D_2 - D_1 = 1,0 \text{ cm} & e &= 0,15 \text{ cm} \end{aligned}$$

obteve-se o valor médio de  $h = 1,29 \text{ W/cm}^2\text{°C}$

Utilizando-se esses valores, foram construídas as curvas (2) das Figuras 3 13 e 3 14 com as máximas temperaturas atingindo 92°C e 62°C, respectivamente

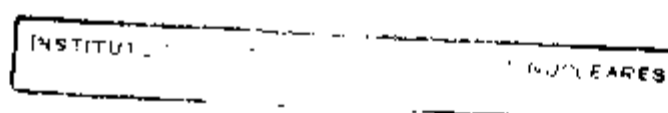
A temperatura na superfície do combustível foi calculada por meio da Expressão (3 4), utilizando os valores de  $q'(z)$  e  $t_e(z)$  já obtidos e a condutibilidade térmica do alumínio em 100°C  $K_e = 2,285 \text{ W/cm}^2\text{°C}$

Com os valores obtidos para  $t_c(z)$  foram feitas as curvas (3) das Figuras 3 13 e 3 14, obtendo-se os valores máximos de temperaturas de 96°C e 63°C, respectivamente

A temperatura no centro do combustível foi obtida por meio da Expressão (3 5), com os valores de  $q'(z)$  e  $t_e(z)$  já calculados e a condutibilidade térmica do urânio natural metálico em 300°C  $K_c = 0,303 \text{ W/cm}^2\text{°C}$

Obtiveram-se os valores de  $t_m(z)$  com os quais foram construídas as curvas (4) das Figuras 3 13 e 3 14, sendo as máximas temperaturas atingidas, 247°C e 127°C, respectivamente

Se utilizarmos um fator de segurança para compen -



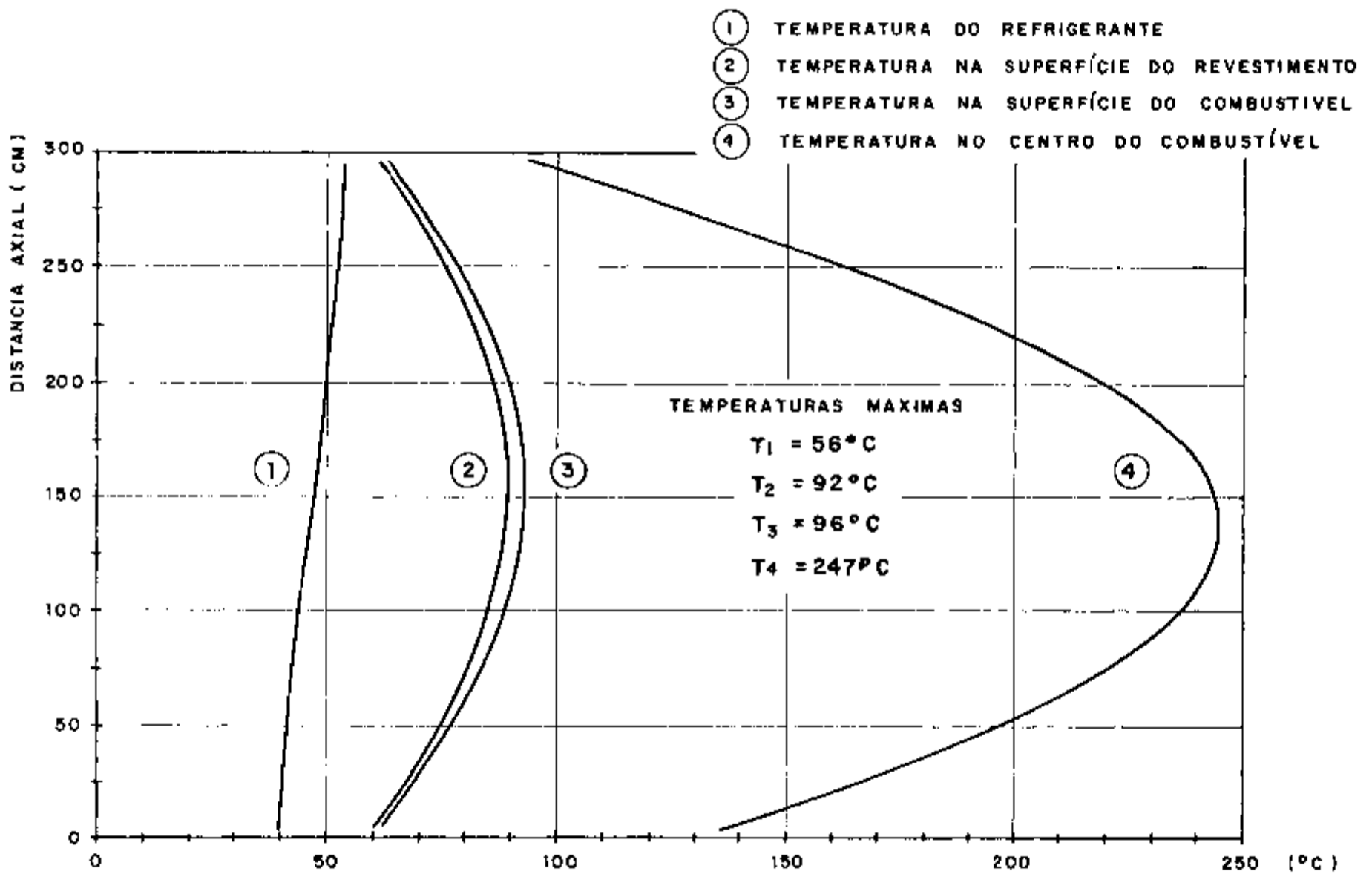


Figura 3 13 - Distribuição de temperaturas no canal mais quente do reator

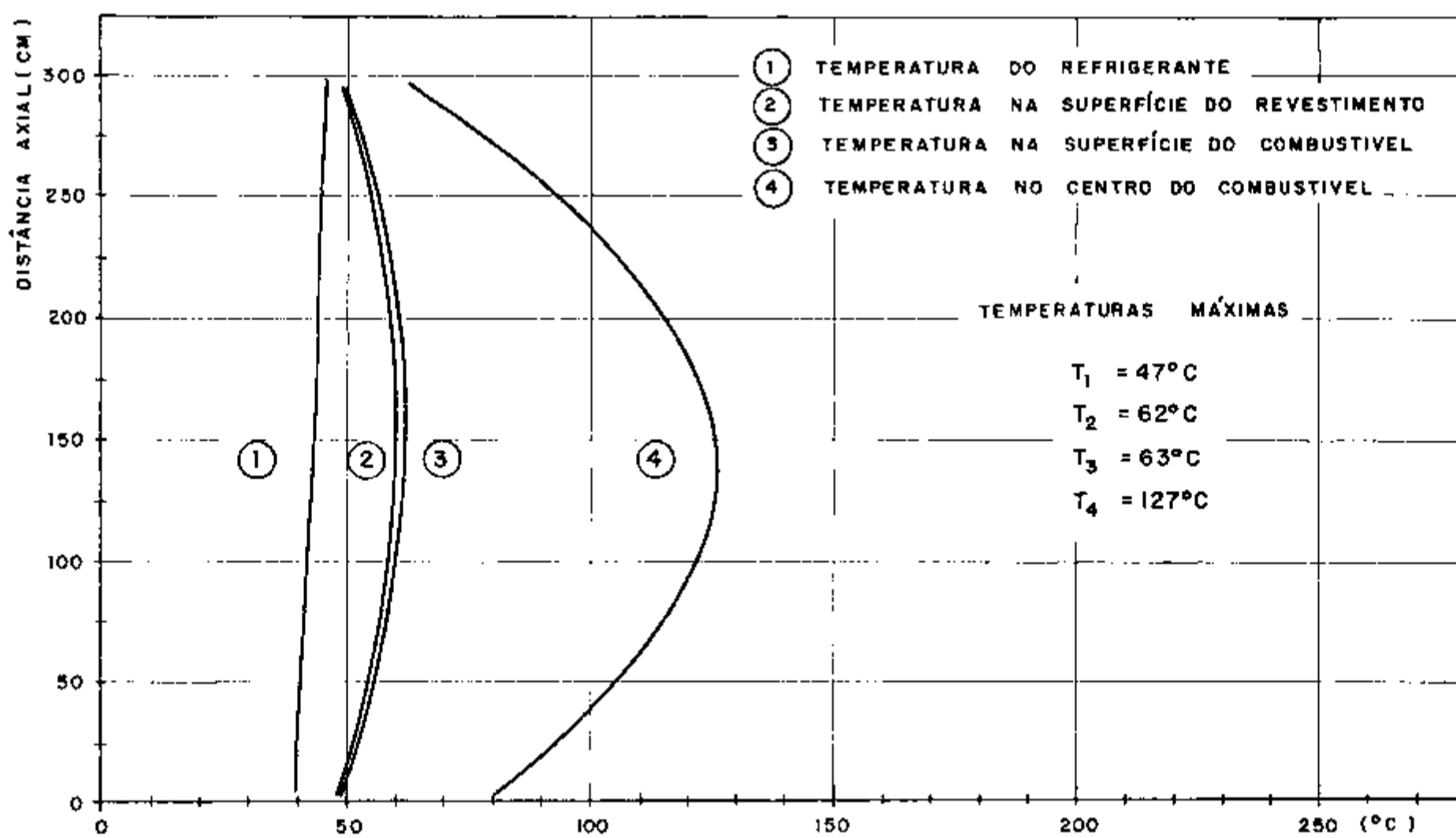


Figura 314 - Distribuição de temperaturas no canal mais frio do reator

sar possíveis incertezas nos cálculos, devidas à avaliação das propriedades dos materiais e simplificações inerentes aos métodos empregados, e possíveis mudanças dimensionais ou perturbações do fluxo neutrônico, teremos melhores condições para verificar se a integridade do encamisamento ou do combustível estão asseguradas. Na Tabela 3.5, temos as temperaturas máximas calculadas sem fator de segurança, com fator de segurança 1,5 e as máximas admissíveis para o encamisamento e o combustível. Nessa Tabela podemos comparar essas temperaturas e concluir que a margem de segurança é satisfatória.

TABELA 3.5 - COMPARAÇÃO DAS TEMPERATURAS MÁXIMAS

Material	Região	Temperatura máxima (F <sub>S</sub> =1) (°C)	Temperatura máxima (F <sub>S</sub> = 1,5) (°C)	Temperatura máxima admissível (°C)
Encamisamento - Al	superfície	92	138	240
Combustível - U metálico	superfície	96	144	580
	centro	247	371	

### 3.9 Perda de Carga

O trabalho de bombeamento está estreitamente ligado à perda de carga do fluido refrigerante que é dada pela expressão

$$B = \Delta p A_c v \quad (3.7)$$

onde  $\Delta p$  queda de pressão ao longo do circuito (N/m<sup>2</sup>)  
 $A_c$  área da seção de escoamento do refrigerante (m<sup>2</sup>)

v    velocidade do refrigerante (m/s)  
 B    potência    de    bombeamento ( W)

No cerne do reator considerou-se  $\Delta p$  como a diferença entre a pressão de entrada e a pressão de saída do refrigerante que é dada pela expressão

$$\Delta p = f \frac{L}{D_e} \frac{\rho v^2}{2} \quad (3.8)$$

onde    f    fator de fricção adimensional  
 L    comprimento do canal (cm)  
 D<sub>e</sub>    diâmetro equivalente (cm)  
 ρ    densidade do refrigerante (kg/m<sup>3</sup>)

O fator f utilizado acima é o fator de Darcy - Weisbach, que pode ser obtido por meio dos diagramas de Moody e a partir do número de Reynolds correspondente ao escoamento

$$R_e = \frac{D_e v \rho}{\nu}$$

onde, D = 0,01m, v = 3m/s e com as propriedades da água pesada tomadas em 45°C

O número de Reynolds obtido foi  $5,3 \times 10^4$ , caracterizando a turbulência do escoamento. Para esse  $R_e$  e uma rugosidade relativa das paredes dado por  $\epsilon/D_e \approx 0,0004$ , o diagrama de Moody nos fornece

$$f \approx 3,7 \times 10^{-2}$$



Utilizando-se a Expressão (3 8) obtém-se

$$\Delta p \cong 5,44 \times 10^4 \text{ N/m}^2 = 0,55 \text{ kgf/cm}^2$$

A partir desse resultado foi calculada a potência total de bombeamento do refrigerante através do cerne do reator por meio da Expressão (3 7), com  $A_c = 5,97\text{cm}^2$  por canal

$$B_{\text{Canal}} = 97,4 \text{ W}$$

Considerando-se 230 canais de refrigeração, a potência total de bombeamento através do cerne é dada por

$$B_{\text{Total}} = 22,4 \text{ kW}$$

Além desse valor, devem também ser consideradas as perdas de carga na tubulação e nos demais equipamentos que compõem o conjunto do reator, no dimensionamento do sistema de acionamento das bombas. Na Figura 3 15 é apresentado um diagrama de fluxo do conjunto formado pelo reator e auxiliares e na Figura 3 16 apresenta-se um corte vertical esquemático do reator propriamente dito.

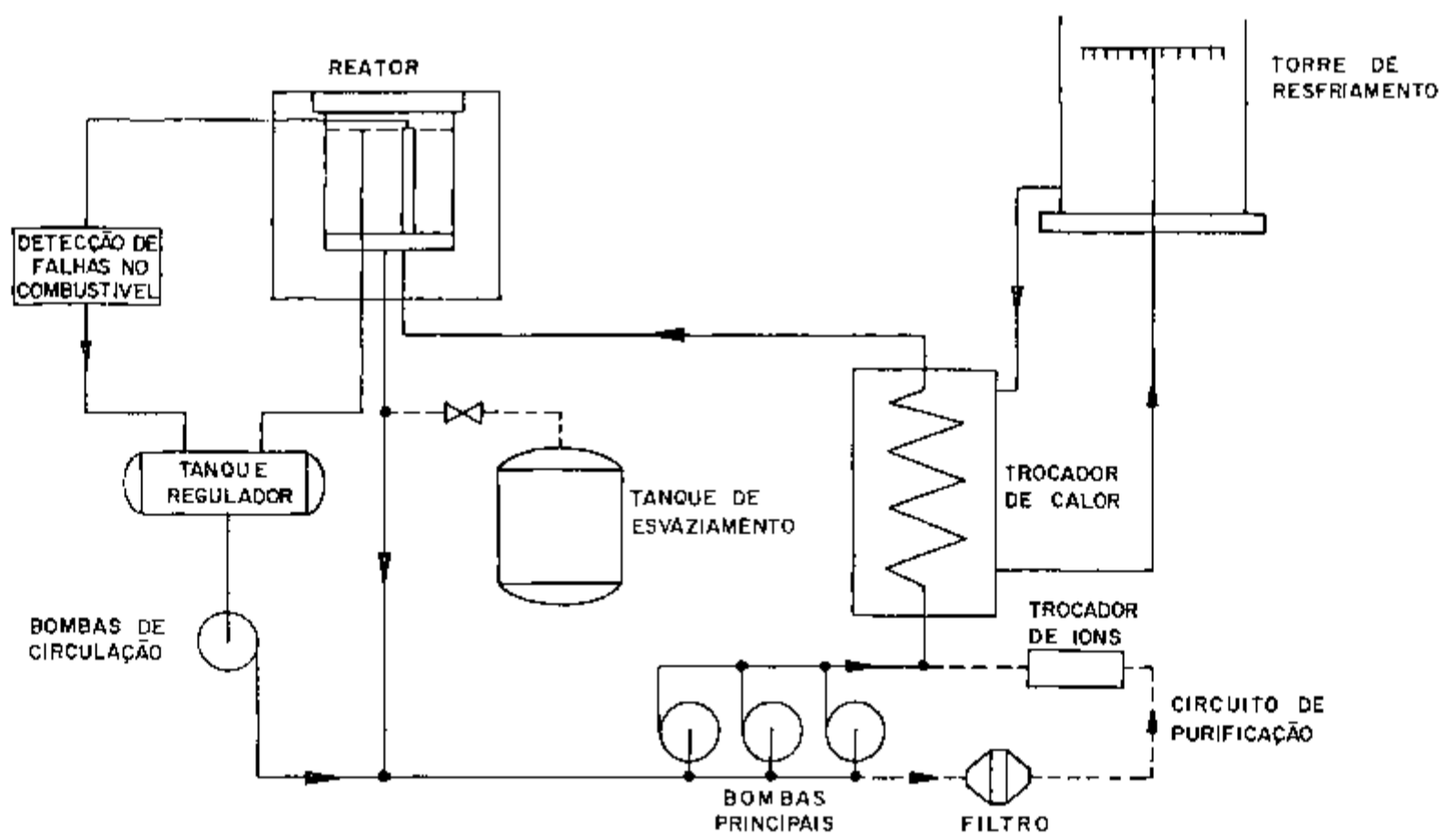


FIGURA 3 15 - DIAGRAMA DE FLUXO ESQUEMÁTICO DO REATOR

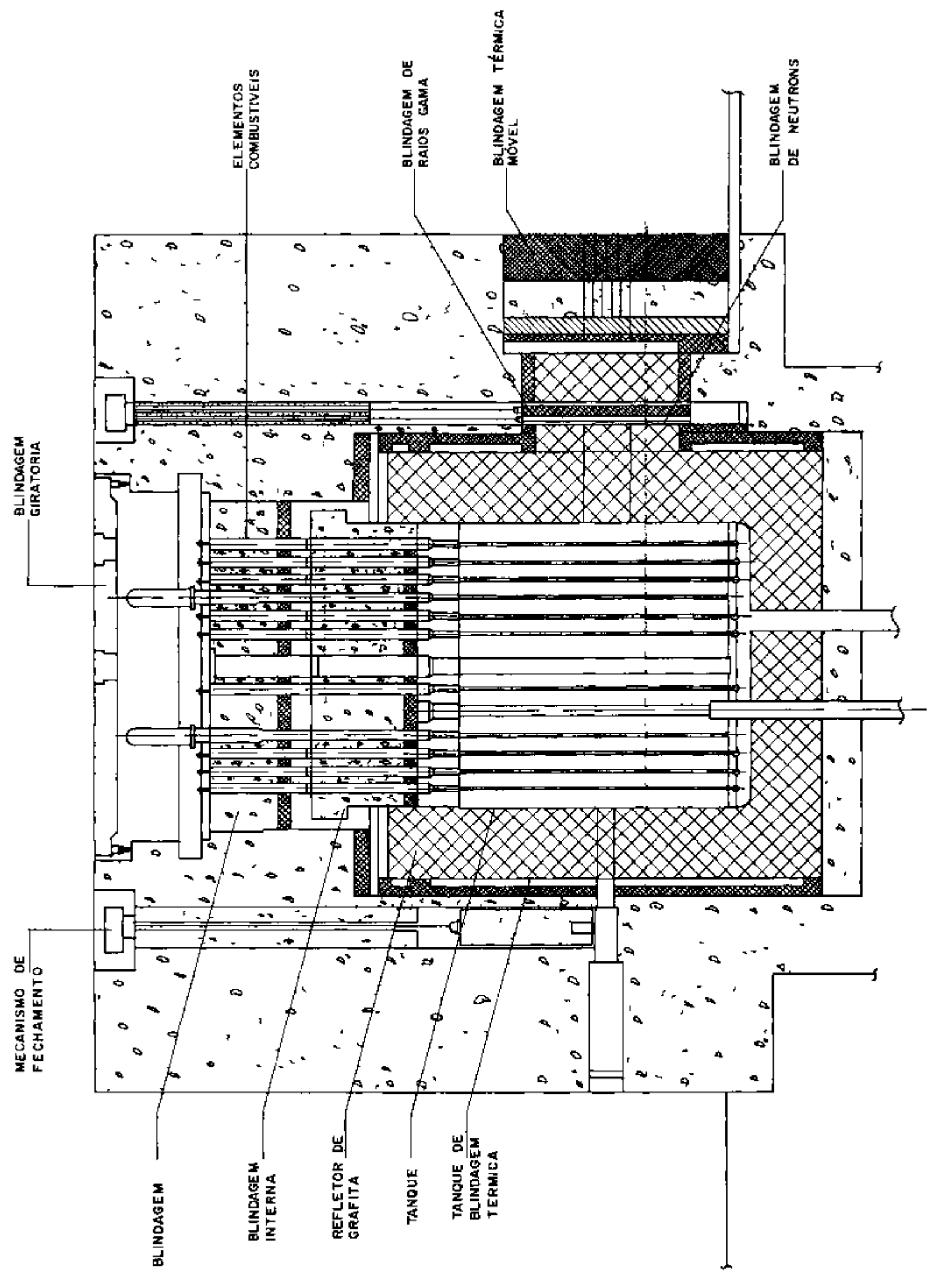


FIGURA 3 16 - VISTA GERAL ESQUEMÁTICA DO REATOR EM CORTE VERTICAL

## 4 PRODUÇÃO DE FONTES RADIOATIVAS

### 4.1 Introdução

As fontes de cobalto-60 e irídio-192 são os radioisótopos que, em termos de atividade, tem tido a maior utilização no País. O nível das importações dos mesmos tem crescido apreciavelmente, sendo a participação de ambos superior a 99% do total geral das importações de radioisótopos, como foi demonstrado no Capítulo 1.

Em função dessas considerações, neste Capítulo são apresentadas as atividades específicas e totais de cobalto-60 e irídio-192 que poderiam ser obtidas por meio do reator proposto neste trabalho.

O fluxo neutrônico térmico (0 a 0,625 eV) médio no cerne do reator é de  $1,6076 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup> s. Esse valor foi utilizado como base nos cálculos de ativação. Na Figura 4.1 é apresentada a distribuição radial do fluxo neutrônico térmico para três seções horizontais do reator e na Figura 4.2, a distribuição axial do fluxo neutrônico térmico ao longo do canal mais quente e do mais frio do reator. Os valores do fluxo neutrônico foram calculados por meio do programa CITATION.

### 4.2 Produção de Cobalto-60

O material empregado como alvo é o cobalto metálico, constituído unicamente pelo isótopo natural Co-59. A presença de impurezas deve ser limitada a no máximo 0,5%, e a superfície do alvo deve ser isolada do meio a fim de impedir a contaminação do mesmo pelo óxido de cobalto ativado / 20 /

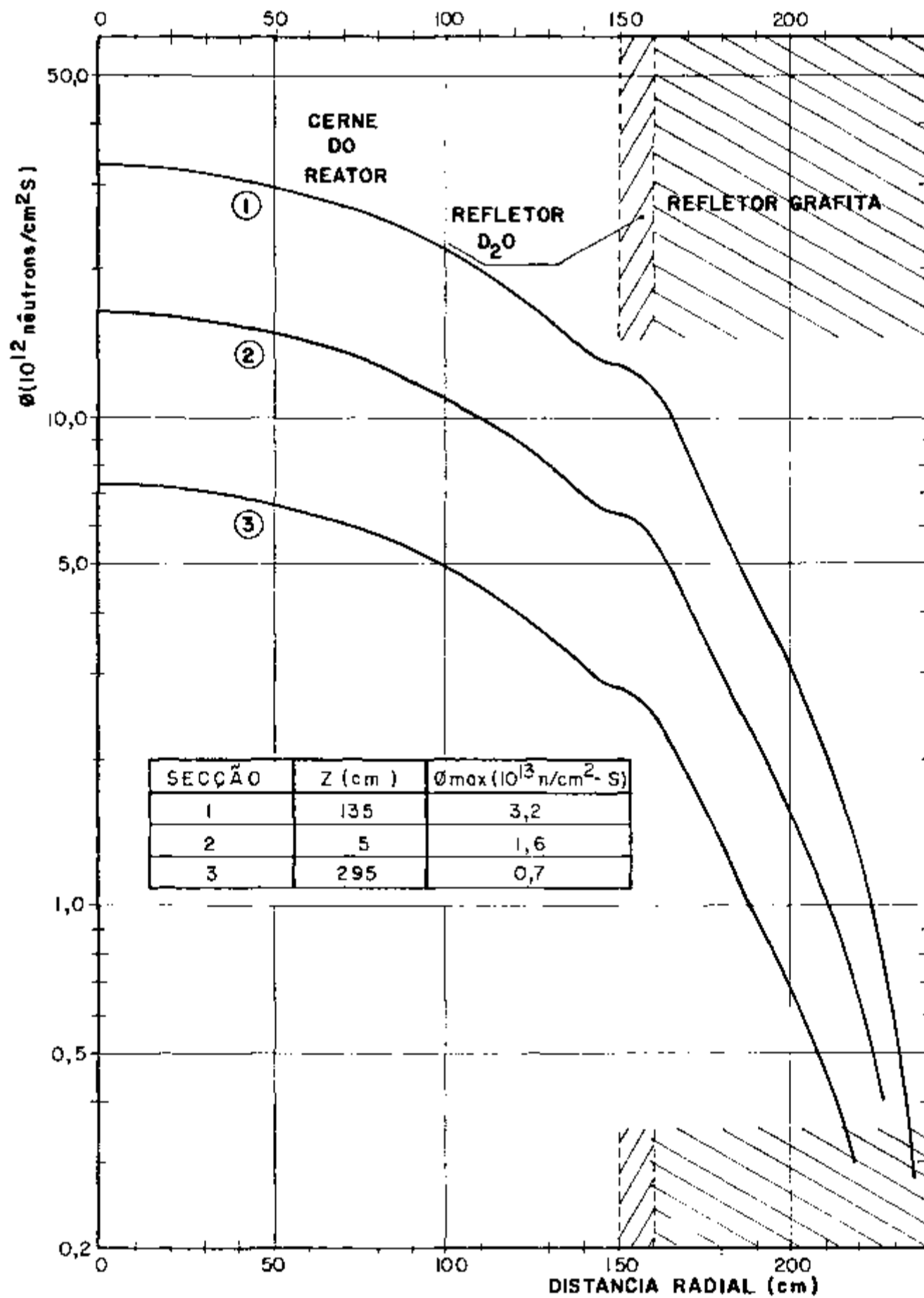


FIGURA 41 - DISTRIBUIÇÃO RADIAL DO FLUXO NEUTRÔNICO TERMICO (0 a 0,625 eV)

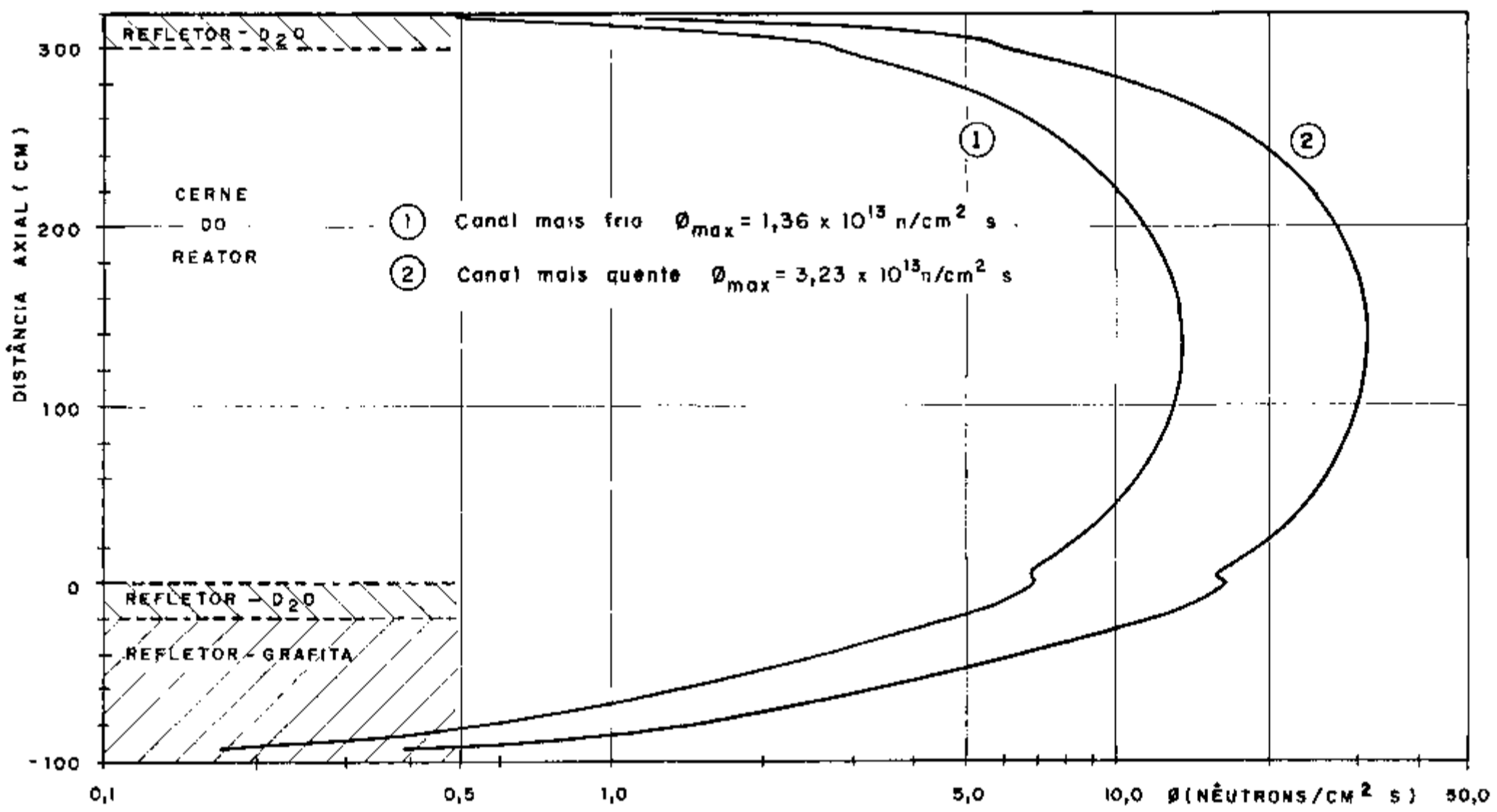


Figura 4.2 - Distribuição axial do fluxo neutrônico termico ( 0 a 0,625 eV )

A atividade do Co-60 produzido foi calculada por meio da expressão a seguir

$$A = \frac{N_c \sigma_{at} \phi}{1 - \sigma_{at} \phi / \lambda_c} \left[ e^{-\sigma_{at} \phi t} - e^{-\lambda_c t} \right] \quad (41)$$

onde

- A atividade do Co-60 em desintegrações por segundo e por  $\text{cm}^3$ ,
- $\phi$  fluxo neutrônico térmico médio em  $\text{n/cm}^2 \text{ s}$ ,
- $\sigma_{at}$  secção de choque de ativação em  $\text{cm}^2$ ,
- $N_c$  densidade atômica do alvo em átomos/ $\text{cm}^3$ ,
- $\lambda_c$  constante de desintegração do Co-60 em  $\text{s}^{-1}$ ,
- t período de irradiação em segundos

As propriedades do cobalto, necessárias para o cálculo de ativação são apresentadas na Tabela 4 1

TABELA 4 1- PROPRIEDADES DE INTERESSE PARA O CÁLCULO DE ATIVAÇÃO DO COBALTO

$\rho_c (\text{g/cm}^3)$	8,71
$N_c (\text{at/cm}^3)$	$0,089 \cdot 10^{24}$
$\sigma_{at} (10^{-24} \text{cm}^2)$	37
$\lambda_c (\text{s}^{-1})$	$4,183 \cdot 10^{-9}$

Foram considerados alvos cilíndricos de três diâmetros 2 mm, 3mm e 4mm. Para cada um dos mesmos foi calcula-

da a atividade em Curies por unidade de comprimento e a atividade em Curies por unidade de massa, por meio das seguintes expressões

$$A_C = f_n \frac{A}{3,7 \cdot 10^{10}} \frac{\pi d^2}{4} \quad (42)$$

onde

$A_C$  atividade do Co-60 por unidade de comprimento (Ci/cm),

$f_n$  fator de autoblindagem aos nêutros,

$d$  diâmetro da amostra em cm,

$A$  obtido por meio da Expressão 41,

e

$$A_M = f_n \frac{A}{3,7 \cdot 10^{10}} \frac{1}{\rho_C} \quad (43)$$

onde

$A_M$  atividade do Co-60 por unidade de massa (Ci/g),

$\rho_C$  massa específica do alvo em g/cm<sup>3</sup>

O fator de autoblindagem foi calculado para os alvos de diferentes diâmetros segundo a fórmula de Nisle, apresentada a seguir

$$f_n = \frac{1}{2\xi_C} (1 - e^{-2\xi_C}) \quad (44)$$

onde

$$\xi_C = \frac{\Sigma_a d}{2}$$

com

$\Sigma_a$  secção de choque macroscópica de absorção do material alvo (para o Co-59,  $\Sigma_a \approx 3,293 \text{ cm}^{-1}$ ),



d diâmetro do alvo em cm

Os resultados do cálculo do fator de autoblindagem,  $f_n$ , relativo aos diversos diâmetros de alvo são apresentados na Tabela 4 2 /38/

TABELA 4 2- FATOR DE AUTOBLINDAGEM EM FUNÇÃO DO DIÂMETRO DOS ALVOS DE COBALTO

Diâmetro do Alvo (cm)	Fator de Autoblindagem $f_n$
0,2	0,733
0,3	0,635
0,4	0,556

Para diversos períodos de ativação foram calculados os valores da atividade por unidade de comprimento,  $A_c$ , e da atividade por unidade de massa,  $A_M$ , construindo-se as Tabelas 4 3 e 4 4 e os gráficos das Figuras 4 3 e 4 4

TABELA 4 3- ATIVIDADE POR UNIDADE DE COMPRIMENTO ( $C_1/cm$ ) DO Co-60, EM FUNÇÃO DO DIÂMETRO DO ALVO E DO PERÍODO DE IRRADIAÇÃO

Período de irradiação ( dias )	Diâmetro dos Alvos (cm)		
	0,2	0,3	0,4
200	2,28	4,46	6,93
400	4,39	8,56	13,31
600	6,32	12,33	19,17
800	8,09	15,79	24,56
1000	9,72	18,97	29,50

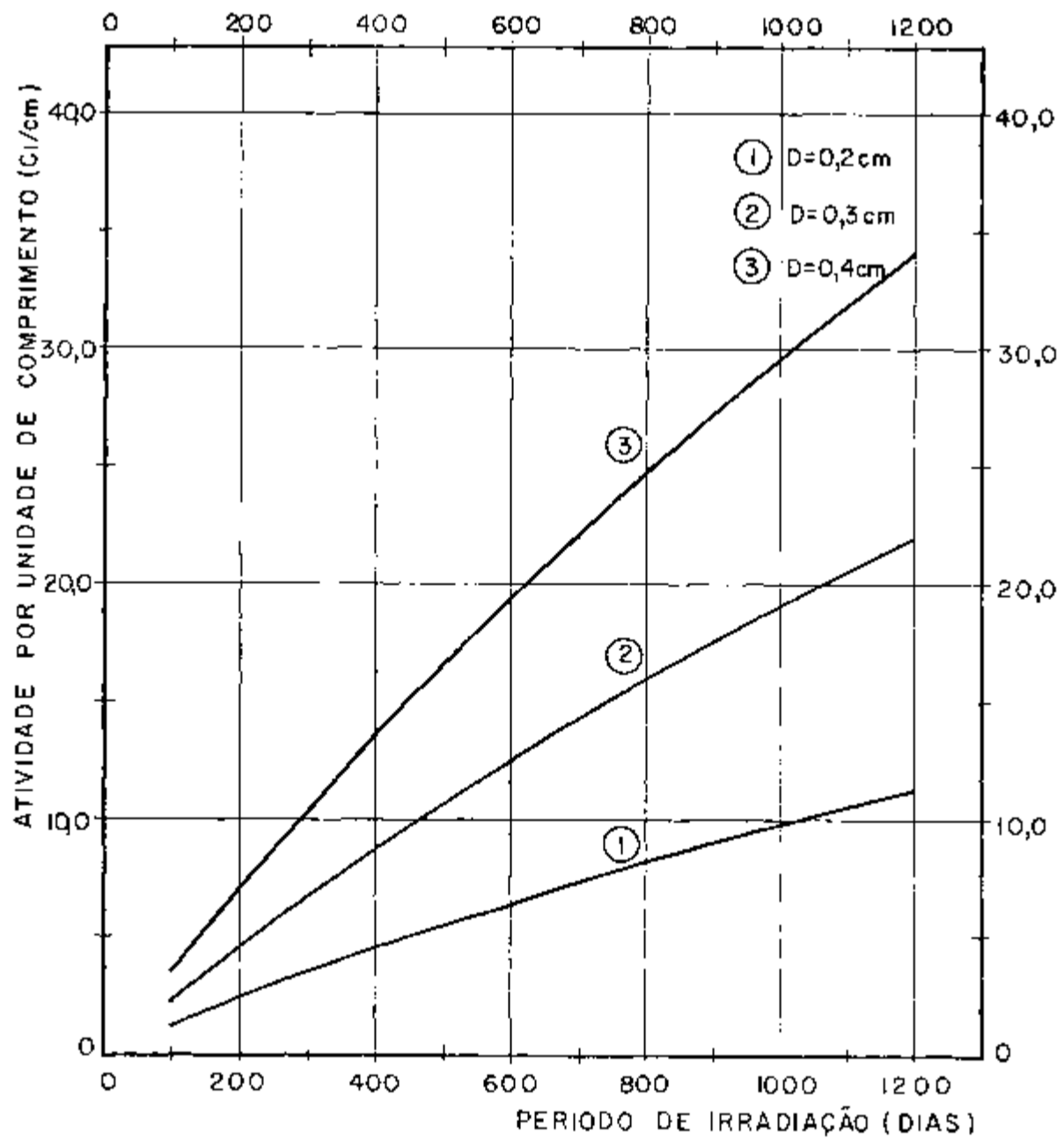


FIGURA 4 3 — ATIVIDADE DO COBALTO-60 POR UNIDADE DE COMPRIMENTO, EM FUNÇÃO DO PERÍODO DE IRRADIAÇÃO E DO DIÂMETRO DO ALVO

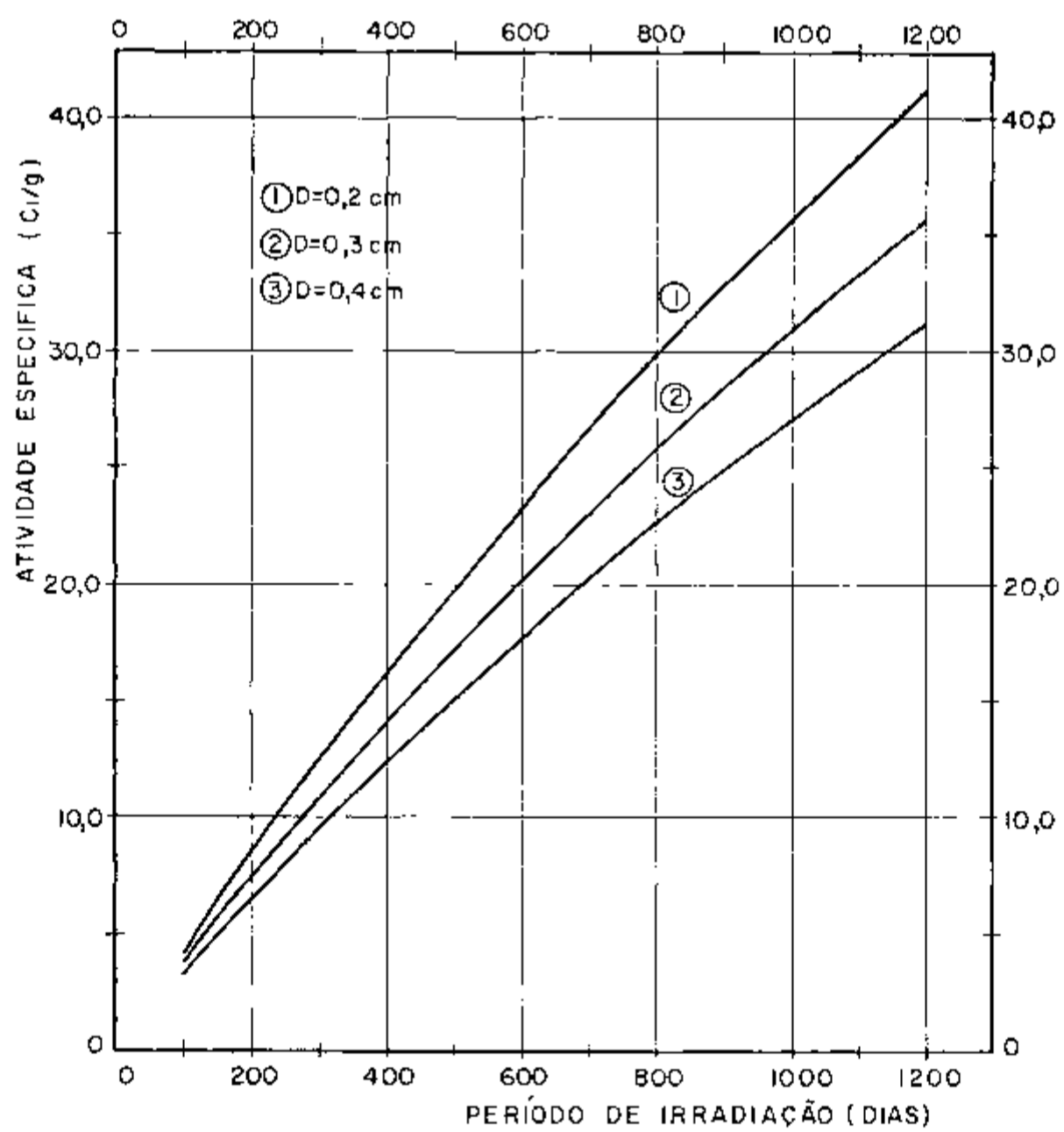


FIGURA 4 4 - ATIVIDADE ESPECIFICA DO COBALTO-60, EM FUNÇÃO DO PERÍODO DE IRRADIAÇÃO E DO DIÂMETRO DO ALVO

TABELA 4 4- ATIVIDADE ESPECÍFICA (Ci/g) DO Co-60, EM FUNÇÃO DO DIÂMETRO DO ALVO E DO PERÍODO DE IRRADIAÇÃO

Período de Irradiação ( dias )	Diâmetro dos Alvos (cm)		
	0,2	0,3	0,4
200	8,35	7,24	6,33
400	16,03	13,90	12,16
600	23,09	20,02	17,52
800	29,57	25,65	22,44
1000	35,52	30,81	26,95

#### 4 3 Produção de Irídio-192

O Ir-192 é produzido pela ativação do isótopo estável Ir-191 por nêutrons térmicos. Utilizando-se como material alvo o irídio natural, o isótopo Ir-194 é também formado. Contudo, a meia vida desse isótopo é de apenas 17,4 horas e praticamente todo o Ir-194 formado desintegra-se em alguns dias após o término da irradiação /46/

A atividade do Ir-192 produzido foi calculada por meio da seguinte expressão

$$A' = \frac{N_I (\sigma_1 + \sigma_2) \phi a}{1 - (\sigma_1 + \sigma_2 - \sigma_3) \phi / \lambda_I} \left[ e^{-(\sigma_1 + \sigma_2) \phi t} - e^{-(\lambda_I + \sigma_3 \phi) t} \right] \quad (45)$$

onde

- A' atividade em desintegrações por segundo,
- $\phi$  fluxo neutrônico térmico médio em n/cm<sup>2</sup> s,
- $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$  secções de choque relativas às reações indicadas na Tabela 4 5, em cm<sup>2</sup>,

- $N_I$  densidade atômica do alvo, em átomos/cm<sup>3</sup>,  
 $\lambda_I$  constante de desintegração do Ir-192 em s<sup>-1</sup>,  
 $t$  período de irradiação em segundos,  
 $a$  abundância natural do Ir-191

TABELA 4 5- PROPRIEDADES DE INTERESSE PARA O CÁLCULO DE ATIVAÇÃO DO IRÍDIO

$\rho_I$ (g/cm <sup>3</sup> )	22,4
$N_I$ (at/cm <sup>3</sup> )	7,02 10 <sup>22</sup>
$\sigma_1$ [Ir-191(n, $\gamma$ )Ir-192] (10 <sup>-24</sup> cm <sup>2</sup> )	750
$\sigma_2$ [Ir-191(n, $\gamma$ )Ir-192m] (10 <sup>-24</sup> cm <sup>2</sup> )	250
$\sigma_3$ [Ir-192(n, $\gamma$ )Ir-193m] (10 <sup>-24</sup> cm <sup>2</sup> )	700
$\lambda_I$ (s <sup>-1</sup> )	1,078 10 <sup>-7</sup>
a abundância isotópica do Ir-191	0,385
b abundância isotópica do Ir-193	0,615

Foram considerados alvos, de irídio natural, cilíndricos de três diâmetros 2mm, 3mm e 4mm. Foi calculada, para cada um dos mesmos, a atividade em Curies por unidade de comprimento, e a atividade em Curies por unidade de massa, por meio das seguintes expressões

$$A'_c = f'_N \frac{A'}{3,7 \cdot 10^{10}} \frac{\pi d^2}{4} \quad (46)$$

onde

- $A'_c$  atividade do Ir-192 por unidade de comprimento (Ci/cm),  
 $f'_N$  fator de autoblindagem aos nêutrons,  
 $d$  diâmetro da amostra em cm,  
 $A'$  obtido por meio da Expressão 4 5

e

$$A'_M = f'_N \frac{A'}{3,7 \cdot 10^{10}} \frac{1}{\rho_I} \quad (47)$$

onde

- $A'_M$  atividade do Ir-192 por unidade de massa (Ci/g),  
 $\rho_I$  massa específica do alvo em g/cm<sup>3</sup>

O fator de autoblindagem foi calculado segundo a já citada fórmula de Nisle. O valor de  $\Sigma_a$  utilizado no cálculo do fator de autoblindagem para o irídio foi de 30,0cm<sup>-1</sup>. Os resultados obtidos para os alvos de diferentes diâmetros são apresentados na Tabela 4 6

TABELA 4 6- FATOR DE AUTOBLINDAGEM EM FUNÇÃO DO DIÂMETRO DOS ALVOS DE IRÍDIO

Diâmetro do Alvo ( cm)	Fator de Autoblindagem $f'_N$
0,2	1,66 10 <sup>-1</sup>
0,3	1,11 10 <sup>-1</sup>
0,4	8,33 10 <sup>-2</sup>

Para diversos períodos de ativação foram calculados os valores da atividade por unidade de comprimento,  $A'_c$ ,

e da atividade por unidade de massa,  $A_M'$ , construindo-se as Tabelas 4 7 e 4 8 e os gráficos das Figuras 4 5 e 4 6

TABELA 4 7- ATIVIDADE POR UNIDADE DE COMPRIMENTO ( $C_l/cm$ ) DO Ir-192, EM FUNÇÃO DO DIÂMETRO DO ALVO E DO PERÍODO DE IRRADIAÇÃO

Período de irradiação ( dias )	Diâmetro dos Alvos ( cm )		
	0,2	0,3	0,4
20	10,18	15,31	20,42
40	18,19	27,35	36,48
60	24,44	36,75	49,00
80	29,27	44,00	58,67
100	32,93	49,52	66,03

TABELA 4 8 - ATIVIDADE ESPECÍFICA ( $C_l/g$ ) DO Ir-192, EM FUNÇÃO DO DIÂMETRO DO ALVO E DO PERÍODO DE IRRADIAÇÃO

Período de irradiação (dias )	Diâmetro dos Alvos ( cm )		
	0,2	0,3	0,4
20	14,07	9,67	7,25
40	25,85	17,28	12,96
60	34,73	23,21	17,41
80	41,59	27,79	20,84
100	46,80	31,27	23,46

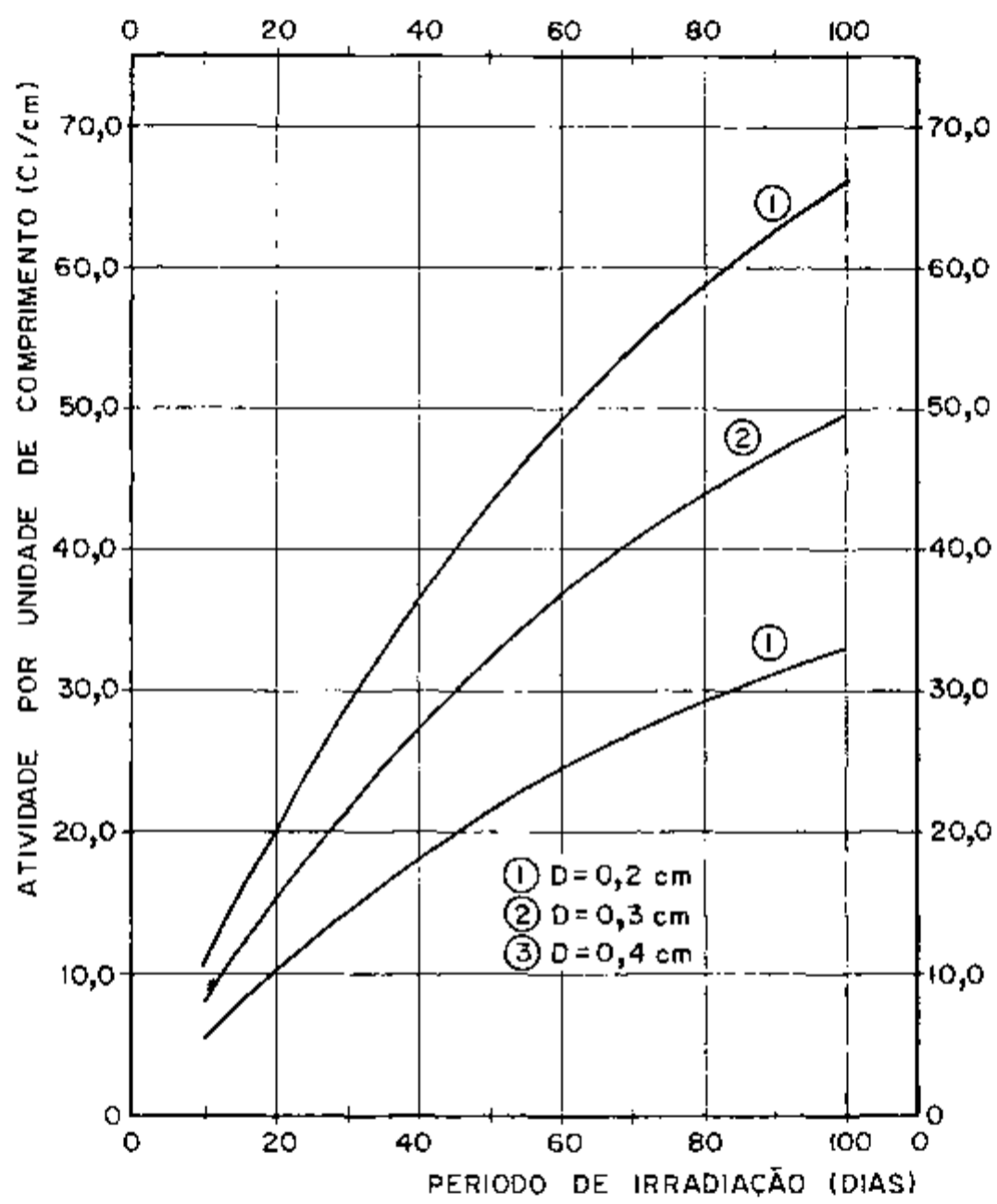


FIGURA 4 5 - ATIVIDADE DO IRIDIO - 192, POR UNIDADE DE COMPRIMENTO, EM FUNÇÃO DO PERÍODO DE IRRADIAÇÃO E DO DIÂMETRO DO ALVO



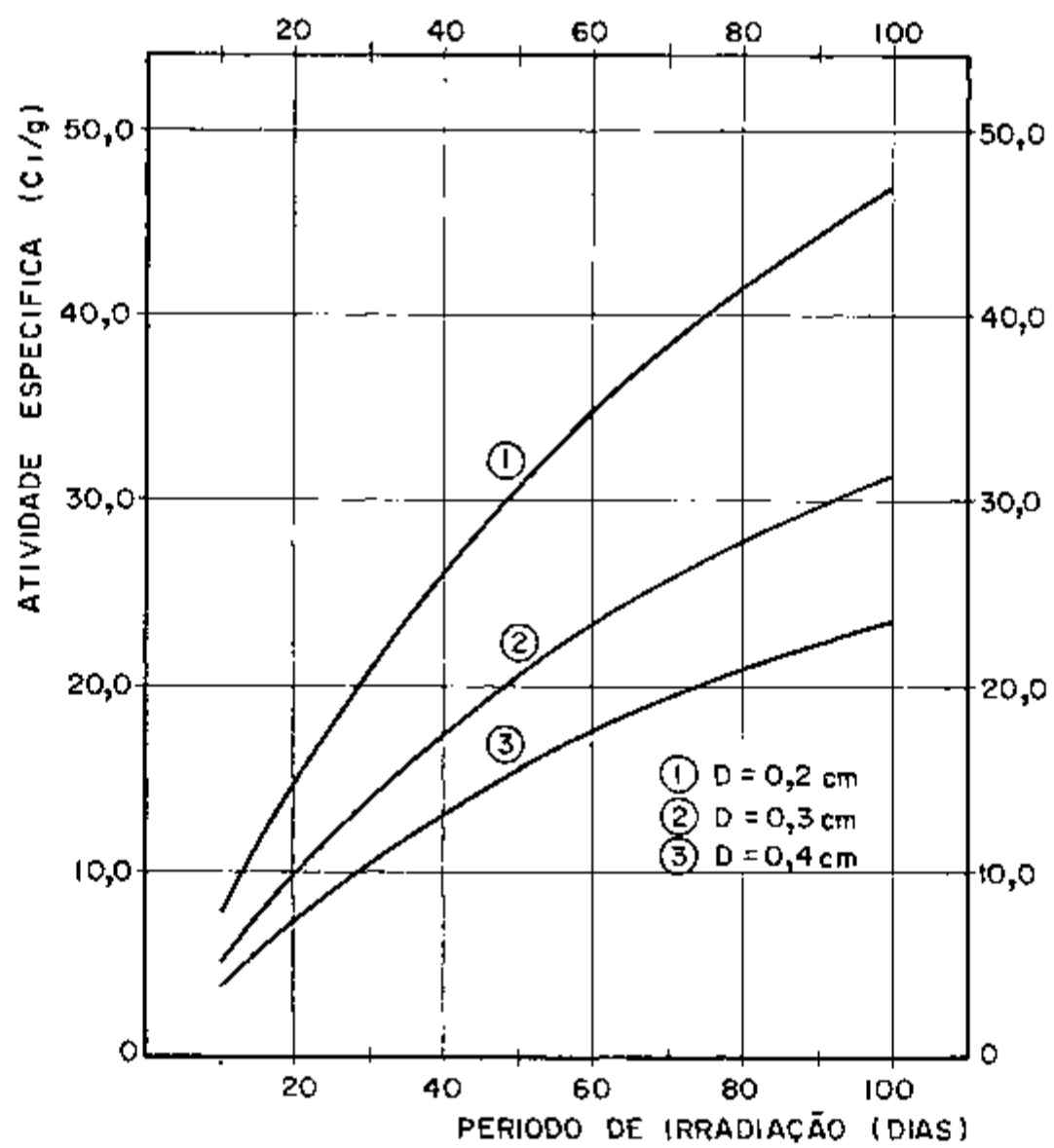


FIGURA 46 - ATIVIDADE ESPECIFICA DO IRIDIO - 192, EM FUNÇÃO DO PERÍODO DE IRRADIAÇÃO E DO DIÂMETRO DO ALVO

#### 4.4 Capacidade de Produção de Fontes Radioativas

Neste item são apresentados os resultados de uma estimativa da capacidade de produção de Co-60 e Ir-192 no reator proposto. O principal aspecto considerado é o da queda de reatividade devido à presença dos materiais a serem irradiados no cerne do reator. O aspecto das depressões localizadas do fluxo neutrônico não é, neste caso, crítico para o funcionamento do reator. A depressão do fluxo foi considerada nos cálculos de ativação e seus efeitos devem ser considerados na distribuição das amostras a serem irradiadas no reator, a fim de evitar ou diminuir a intensidade de interferências indesejáveis.

Na Tabela 4.9 são apresentados diversos valores para a constante de multiplicação efetiva, correspondentes a diversas condições do reator. Os valores de  $K_1$  a  $K_4$  referem-se ao reator sem a presença de materiais a serem irradiados. O valor  $K_1$  corresponde ao instante inicial de funcionamento, com o reator ainda frio e sem produtos de fissão. O valor  $K_2$  refere-se ao reator quente, com a presença de produtos de fissão, após 100 dias de operação. O valor  $K_3$  corresponde às condições do reator após 1000 dias de operação, enquanto  $K_4$  consiste no valor médio da constante de multiplicação efetiva, ao longo de 1000 dias de operação.

TABELA 4.9- VALOR DA CONSTANTE DE MULTIPLICAÇÃO EFETIVA DO REATOR PARA DIVERSAS CONDIÇÕES

$K_1$	$K_2$	$K_3$	$K_4$	$K_5$
1,178	1,142	1,117	1,132	1,040

A fim de assegurar que o reator seja sempre capaz de atingir e manter a criticalidade, e possibilitar o seu

controle é necessário um excesso de reatividade que garanta sua operação contínua. O valor  $K_5$  corresponde à mínima reatividade considerada necessária, neste caso, com ou sem a presença de materiais para irradiação no reator.

Com base no valor médio da constante multiplicativa, no período citado,  $K_4$ , e no mínimo necessário,  $K_5$ , foi avaliada a quantidade média de cobalto ou de irídio que poderia ser irradiada no reator / 2, 50 /

Os resultados obtidos, em termos de volume, são apresentados na Tabela 4 10, para o caso do cobalto, e para o do irídio.

TABELA 4 10 - QUANTIDADE TOTAL MÉDIA DE COBALTO OU DE IRÍDIO A SER IRRADIADA

Material	Quantidade (cm <sup>3</sup> )
Cobalto	3639
Irídio	399

A partir desses valores e dos resultados dos cálculos de ativação apresentados nos itens anteriores, foram construídas as Tabelas 4 11 e 4 12 e os gráficos das Figuras 4 7 e 4 8, referentes à produção, em termos de atividade, de cobalto-60 e irídio-192.

#### 4 4 1- Atividade Total e Específica de Cobalto-60

A Tabela 4 11 refere-se à ativação do cobalto, apresentando para três diâmetros de alvo e para os períodos de irradiação de 400, 700 e 1000 dias, as atividades específicas e totais respectivas para cada caso, bem como a pro -

dução anual média correspondente de cobalto-60

A Figura 4 7 apresenta a estimativa de produção anual média, em termos de atividade, do cobalto-60, em função dos diâmetros de alvo e do período de irradiação, na faixa de cem a um mil e duzentos dias de duração

TABELA 4 11- PRODUÇÃO DE COBALTO-60 EM FUNÇÃO DO DIÂMETRO DO ALVO E DO PERÍODO DE IRRADIAÇÃO

Cobalto-60	Período de Irradiação ( dias)	Diâmetro do Alvo (cm)		
		0,2	0,3	0,4
Atividade Específica (Ci/g)	400	16,03	13,90	12,16
	700	26,40	22,90	20,03
	1000	35,52	30,81	26,95
Atividade total ( $10^5$ Ci) por período	400	5,08	4,41	3,85
	700	8,37	7,26	6,35
	1000	11,3	9,76	8,54
Produção anual média ( $10^5$ Ci/ano)	400	4,64	4,02	3,52
	700	4,36	3,79	3,31
	1000	4,11	3,57	3,12

#### 4 4 2 Atividade Total e Específica de Iridio-192

A Tabela 4 12 refere-se à ativação do irídio , apresentando para os períodos de irradiação de 30, 60 e 90 dias e para três diâmetros diferentes de alvo, as atividades específicas e totais, obtidas para cada caso, assim como a produção anual média correspondente, de irídio-192

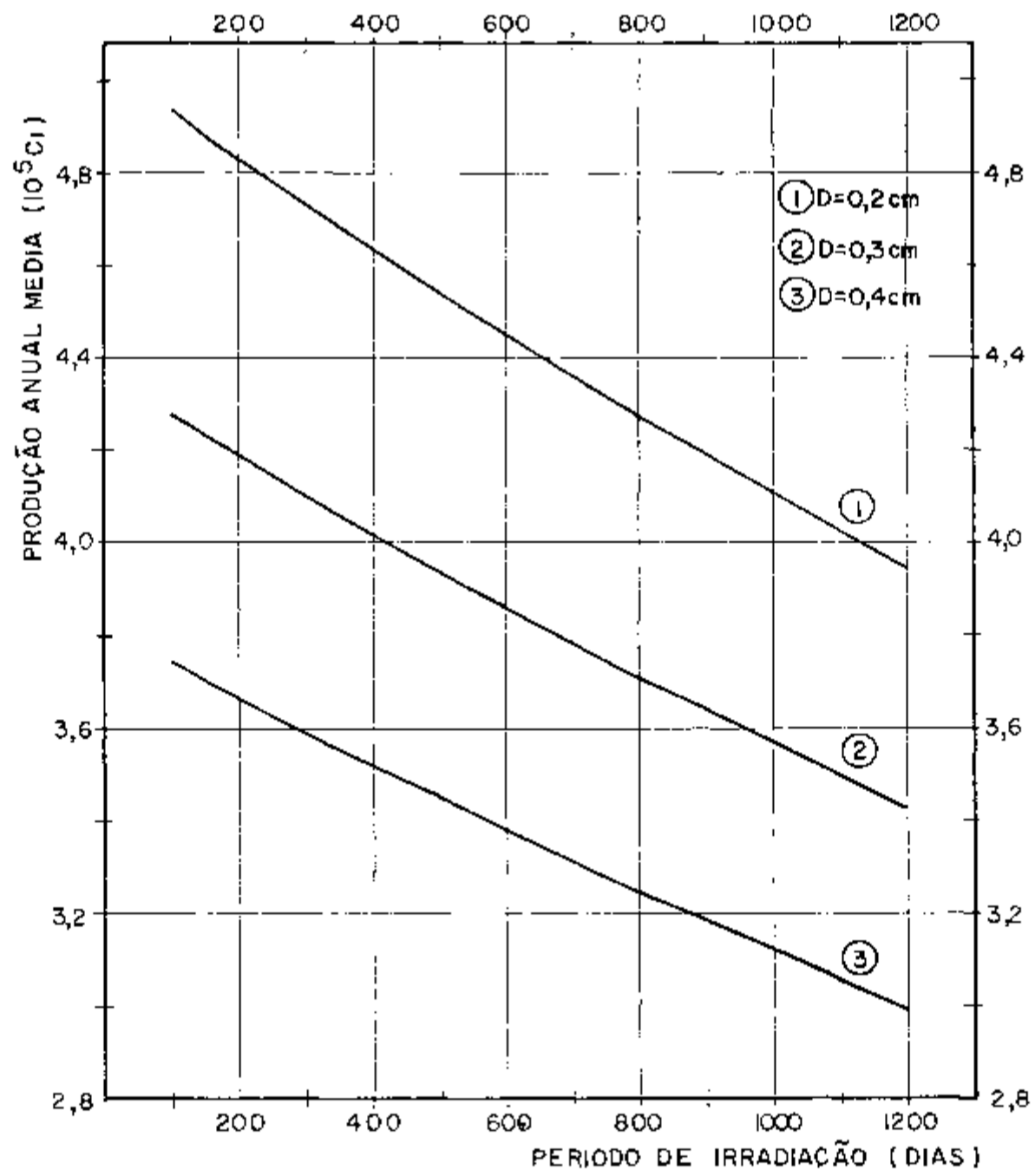


FIGURA 47 - PRODUÇÃO ANUAL MÉDIA DE COBALTO-60 EM FUNÇÃO DO PERÍODO DE IRRADIAÇÃO E DO DIÂMETRO DO ALVO

A Figura 4 8 apresenta a estimativa de produção anual média, em termos de atividade, do irídio-192, em função dos diâmetros de alvo e do período de irradiação, na faixa de dez a cem dias de duração

TABELA 4 12- PRODUÇÃO DE IRÍDIO-192 EM FUNÇÃO DO DIÂMETRO DO ALVO E DO PERÍODO DE IRRADIAÇÃO

Irídio-192	Período de irradiação (dias)	Diâmetro do Alvo (cm )		
		0,2	0,3	0,4
Atividade específica (Ci/g)	30	20,51	13,70	10,28
	60	34,73	23,21	17,41
	90	44,38	29,65	22,24
Atividade total por período ( $10^5$ Ci )	30	1,83	1,22	0,92
	60	3,10	2,07	1,56
	90	3,97	2,65	1,99
Produção anual média ( $10^5$ Ci/ano)	30	22,3	14,9	11,2
	60	18,9	12,6	9,47
	90	16,1	10,8	8,07

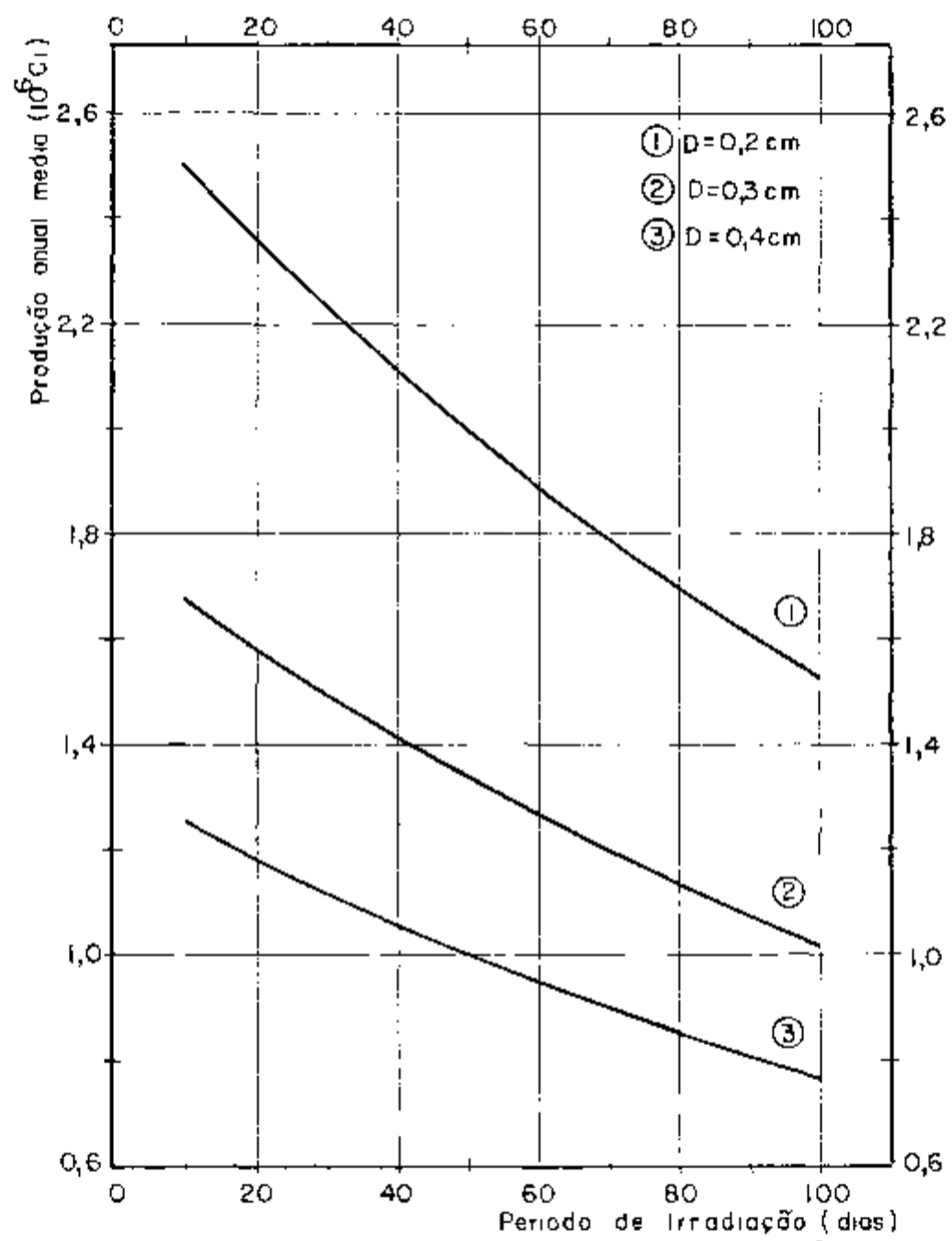


FIGURA 4 B -PRODUÇÃO ANUAL MEDIA DE IRÍDIO-192,  
EM FUNÇÃO DO PERÍODO DE IRRADIAÇÃO  
E DO DIÂMETRO DO ALVO

## 5 CONCLUSÃO E RECOMENDAÇÕES

Como foi visto no Capítulo anterior a capacidade de produção de fontes radioativas no reator é apreciável. No entanto, é importante apontar algumas limitações das mesmas, em função do fluxo no reator não ser muito elevado.

Quanto ao cobalto-60, existem algumas aplicações, particularmente, no seu uso terapêutico em medicina, que exigem altíssimas atividades específicas. A necessidade de se obter nesse caso fontes de dimensões reduzidas com elevada atividade, leva à utilização de fontes que ultrapassam a atividade de 200 Ci/g, as quais não poderiam ser produzidas com o reator proposto.

Todavia, nas aplicações industriais, em gamagrafia - o Co-60, emissor de radiação  $\gamma$  bastante penetrante, de 1,1 e 1,3 MeV e próprio para a análise de materiais ferrosos com espessuras de 30 a 150mm - a questão da atividade específica elevada, apesar de conveniente, não é tão crítica, podendo serem utilizadas fontes menos intensas e de possível produção no reator proposto.

Ainda, na esterilização de produtos médicos (o Brasil importou de 1977 a 1981, mais de um milhão de Curies de Co-60 para essa finalidade) e na irradiação de alimentos para melhorar sua conservação, as fontes podem ser de dimensões maiores e, nesse caso, o aspecto da atividade específica não se apresentará como problema, para o aproveitamento do reator na produção de fontes com essa finalidade.

Deve-se ressaltar que a utilização de irradiadores de Co-60 para esterilização de produtos médicos e conservação de alimentos vem superando com vantagens (maior uniformidade de irradiação, simplicidade e custos) a utilização de acele



radadores de elétrons para esse fim, representando um campo importante para a utilização do cobalto-60 /1, 47,48,49,63 /

Em relação ao irídio-192, utilizado amplamente no Brasil em gamagrafia industrial - o Ir-192 é emissor de radiação  $\gamma$  de 0,61 a 0,136 MeV e próprio para o teste de materiais ferrosos de 20 a 80mm de espessura, ou ligas leves acima de 30mm - o problema da atividade específica também é importante, já que quanto menor a fonte e maior a sua intensidade, mais nítidas e rápidas são as gamagrafias obtidas. Todavia, também neste caso, as atividades específicas obtidas com o reator proposto possibilitam o uso das fontes produzidas na maior parte das aplicações do Ir-192 em gamagrafia no Brasil.

Em termos econômicos, deve-se lembrar que os preços do cobalto-60 no mercado internacional não são muito elevados, basicamente em função da grande capacidade de produção existente e caberia uma avaliação econômica detalhada para estimar e comparar os custos de produção no Brasil com os preços internacionais. Em relação ao irídio-192, deve-se considerar o fato de que o irídio é um metal de preço relativamente elevado, o que conseqüentemente influi no preço final das fontes de Ir-192.

Em ambos os casos, deve-se ressaltar que numa avaliação econômica dessa espécie, devem ser considerados (além dos custos envolvidos com matéria prima, investimentos nas instalações necessárias e despesas operacionais) os grandes benefícios que o aumento apreciável da produção nacional de radioisótopos geraria, principalmente em termos do desenvolvimento da capacitação tecnológica e científica do País na área nuclear.

É relevante considerar que o isótopo iodo-125, em termos de valor, vem tendo participação apreciável nas importações brasileiras de radioisótopos. O I-125 vem sendo muito utilizado na área médica, principalmente no mapeamento da tireoide, dos rins, de porções dos pulmões, em diagnósticos em geral e estudos biológicos. Esse isótopo substitui vantajosamente o I-131, em virtude de sua meia vida mais longa e por ser isento de radiação beta.

Um dos processos mais utilizados para a produção de I-125 tem sido a irradiação em reatores do isótopo Xe-124, utilizando como alvo o gás xenônio, natural ou enriquecido, pressurizado. O elevado preço do I-125 por unidade de atividade, decorre, além dos custos de produção, do preço elevado do xenônio, utilizado como alvo. Seria de interesse a estimativa do custo de produção do I-125 no reator proposto, considerando também as instalações complementares necessárias para o processamento final do produto.

Neste estudo não foi considerado o reprocessamento do combustível depois de utilizado. Todavia, o reprocessamento é relevante pois possibilitaria não só a recuperação do plutônio (cerca de 11,4 kg de Pu-239 em 900 dias de operação), produzido em quantidades significativas em reatores desse tipo, mas também de diversos radioisótopos e isótopos estáveis de interesse.

Entre os radioisótopos recuperáveis por meio do reprocessamento estão o alcalino Cs-137, os alcalino-terrosos, Sr-89 e 90, e Ba-140, os terras raras, Ce-141 e 144, Nd-147, Pr-143, Pm-147, Y-91 e Eu-155, o aniónico Ru-103 e 106, os radiocoloidais Zr-95 e Nb-95, e os gasosos I-131, Xe-133 e Kr-85. O Cs-137 destaca-se pela sua grande utilização como fonte de radiação gama, utilizada em aplicações industriais (meia vida de 26,6 anos, radiação de 0,66 MeV, e pró-

prio para teste de materiais ferrosos de 20 a 90mm de espessura), sendo purificado por diversos processos, entre os quais, o de intercâmbio iônico

Para a viabilização do reator proposto será necessário estudar com certa profundidade a produção de água pesada por meio da utilização do processo CECE acoplado à produção eletrolítica do hidrogênio para a síntese de amônia

Particularmente em relação à economicidade da produção de amônia, aproveitando energia elétrica disponível a baixo custo, seria necessário estudar detidamente as projeções de demanda de energia elétrica, visando a garantia de suprimento, e a viabilidade concreta do aproveitamento da energia excedente por meio da fórmula proposta neste trabalho. De qualquer forma, deve ter-se em conta que a produção de água pesada representaria um aspecto bastante positivo no desenvolvimento nuclear brasileiro

Em estudos posteriores, recomenda-se, a consideração dos dispositivos necessários para a irradiação dos diversos materiais no reator, detalhando-se o cálculo das depressões de fluxo neutrônico, a fim de definir a melhor distribuição dos materiais no reator e a programação da produção, visando a utilização plena das potencialidades do reator proposto. É importante também, a definição dos sistemas a serem instalados no reator para seu aproveitamento para pesquisas nucleares em geral /34/

Um aspecto posterior a ser também abordado , e aqui citado em função de sua importância, é o do estudo do comportamento cinético do reator, e, principalmente, em decorrência de transientes provocados em condições de acidente. Vinculado a esse aspecto, está o projeto dos sistemas de controle e de instrumentação do reator, fundamentais para a perfeita operação e garantia da segurança do reator.

As características gerais do reator nuclear proposto são apresentadas no Quadro 5.1.

## QUADRO 5 1 - CARACTERÍSTICAS GERAIS DO REATOR

Tipo	Tanque - Urânio natural e água pesada
Finalidade	Pesquisa e produção de radioisótopos
Potência (térmica)	20MW

CERNE DO REATOR

Geometria	Cilíndrica
Diâmetro ativo	300 cm
Altura ativa	300 cm
Fluxo neutrônico térmico máximo	$3,23 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$
Fluxo neutrônico térmico médio	$1,61 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$
Fluxo neutrônico rápido máximo	$4,69 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$
Massa total de combustível	9267 kg de urânio natural metálico
Massa de moderador	22520 kg de água pesada (99,75%)
Densidade de Potência máxima	$1,90 \text{ W/cm}^3$
Densidade de Potência média	$0,94 \text{ W/cm}^3$
Taxa de queima média	1940 MWD/t

ELEMENTO COMBUSTÍVEL

Tipo	Urânio natural metálico
Forma	Barras maciças cilíndricas
Diâmetro	30 mm
Comprimento total ativo	300 cm
Número total de elementos	230
Arranjo	Quadrático - passo 17,5 cm
Potência específica máxima	4,35 MW/t

ELEMENTO COMBUSTÍVEL

Potência específica média	2,16 MW/t
Temperatura máxima no centro do combustível	247°C
Temperatura máxima na superfície do combustível	96°C

ENCAMISAMENTO

Material	Alumínio 1100
Diâmetro externo	33 mm
Espessura da parede	1,5 mm
Temperatura máxima na superfície do encamisamento	92°C

CANAL DE RESFRIAMENTO

Material	Alumínio 1100
Secção de escoamento	Anular ( $d_1 = 33$ mm e $d_e = 43$ mm)
Espessura da parede	1,5 mm

REFLETOR

Material	Água pesada e grafita
Dimensões	Parte superior - 20 cm D <sub>2</sub> O Parte circunferencial- 10cm D <sub>2</sub> O e 80cm grafita Parte inferior - 20 cm D <sub>2</sub> O e 80cm grafita
Quantidade	6 750 kg D <sub>2</sub> O 48,7 m <sup>3</sup> grafita

REFRIGERANTE

Fluido	Água pesada
Vazão total	453 kg/s
Pressão de trabalho	1,60 kgf/cm <sup>2</sup> (entrada)
Temperatura	40°C ( entrada) 51°C ( saída )
Perda de carga no cerne	0,55 kgf/cm <sup>2</sup>
Velocidade média	3m/s

## 6 APÊNDICE

### 6.1 Aplicações de Radioisótopos

Nos Quadros 6.1, 6.2, 6.3 e 6.4 são apresentadas as principais aplicações dos radioisótopos nas áreas médica, industrial, na agricultura e em hidrologia, respectivamente. No Quadro 6.5 são apresentadas as meias vidas dos radioisótopos mais importantes / 35/

### 6.2 Produção de Radioisótopos

Na Figura 6.1 é apresentado um esquema relativo a produção de radioisótopos, com as diversas etapas a serem desenvolvidas até que o produto possa ser utilizado nas várias áreas de aplicação.

### 6.3 Distribuição de Fluxo Neutrônico Rápido

Na Figura 6.2 é apresentada a distribuição radial do fluxo neutrônico rápido no reator proposto para três seções horizontais, sendo que a curva (1) corresponde à seção de maior fluxo neutrônico rápido. Na Figura 6.3 é apresentada a distribuição axial do fluxo neutrônico rápido no reator proposto para o canal mais quente e para o canal mais frio do reator.

### 6.4 Programas de Computação Utilizados

Para a realização dos cálculos de criticalidade de um reator devem ser determinados os parâmetros microscópicos

cópicos e efetuado o estudo macroscópico do sistema

O estudo microscópico do reator refere-se à estrutura fina do fluxo neutrônico, efeitos locais das heterogeneidades e à determinação das secções de choque dos multigrupos de energia, os quais fornecem a base para a análise de difusão do reator em seu conjunto

O conhecimento dos parâmetros relativos às variações das densidades de reação possibilita o cálculo de secções de choque que incluem os efeitos da heterogeneidade da distribuição dos elementos absorvedores no cerne do reator, permitindo o estudo macroscópico do reator utilizando a hipótese de que este seja composto por uma ou mais misturas homogêneas dos diversos elementos constituintes do reator nuclear

#### 6 4 1 O Programa HAMMER

O programa de computação HAMMER /68/, desenvolvido em Savannah River, E U A , é utilizado para o cálculo das secções de choque O HAMMER é constituído por cinco subprogramas que realizam o cálculo dos parâmetros de um reator nuclear composto pela repetição infinita de células unitárias idênticas O cálculo é feito pelo método de transporte em multigrupos de energia, e as secções de choque obtidas são colocadas em forma apropriada para os cálculos de criticalidade do reator por meio do método de difusão

Os cinco subprogramas são apresentados a seguir

##### a- Programa CAPN

Este programa interpreta os dados de entrada e coordena a execução dos programas seguintes



**b- Programa THERMOS**

Sua função é calcular a distribuição do fluxo neutrônico térmico ( até 0,625 eV) por meio da teoria integral de transporte unidimensional. Fornece, na saída, as secções de choque médias para cada grupo, os parâmetros de difusão e as taxas de reação

**c- Programa HAMLET**

Executa os mesmos cálculos que o programa anterior para o intervalo de energia entre 0,625 eV e 10 MeV. Além disso o programa HAMLET calcula as probabilidades de escape a ressonância, os fatores de fissão rápida e o "buckling" do reticulado

**d- Programa FLOG**

Este programa utiliza as secções de choque calculadas pelos programas THERMOS e HAMLET para efetuar a pesquisa de criticalidade do reator infinito

**e- Programa DIED**

Utiliza os resultados dos programas anteriores para fornecer o balanço de nêutrons, possibilitando a comparação entre os fenômenos de escape de nêutrons, de absorção pelos vários isótopos e de indução de fissão

**6 4 2 O Programa CITATION**

O programa de computação CITATION /22/, desenvolvido em Oak Ridge, E U A , é utilizado para a resolução de problemas que envolvem o tratamento pela teoria de difusão, representado por diferenças finitas, até três dimensões, com espalhamento de grupo para grupo

O método de resolução é explícito , e as aproximações por diferenças finitas no espaço e tempo foram melhoradas. Os problemas de auto-valores do fluxo neutrônico são resolvidos por iterações diretas, na determinação do fator de multiplicação de nêutrons, ou na determinação da criticidade do reator com variação das concentrações de núcleos

Podem ser tratados problemas em geometrias cilíndricas, hexagonal e trigonal. O programa pode ser utilizado para resolver problemas com análise do sistema de recarregamento em multiciclos. Pode resolver também, problemas de perturbação de primeira ordem, se forem fornecidos os dados microscópicos e as concentrações dos núclídeos respectivos , além de resolver problemas de perturbação em casos estáticos, se forem fornecidos os dados macroscópicos necessários

## QUADRO 6 1- APLICAÇÕES MÉDICAS DE RADIOISÓTOPOS

Marcação de Células Sanguíneas	Cr-51, I-125, I-131, Hg-197
Mapeamento Ósseo	Ca-47, Sr-85, F-18, Sr-87
Mapeamento Cerebral	As-74, Bi-206, Cu-64, Hg-197, Hg-203, I-131, Tc-99m, I-125
Vazão Cardíaca	I-131, Na-24, Hg-197
Diagnose Cardíaca	Kr-85
Fluxo Sanguíneo do Cérebro	I-125, I-131, Kr-85, Xe-133, Ca-47, I-132, P-32, Na-24, Au-198, In-113m
Radioterapia do Chondrosarcoma	S-35
Estudos Circulatórios	Cr-51, I-131, Na-24, Cs-131, Tc-99m, Ca-57, Te-133, Kr-85, I-125, P-32, Au-198, In-113m
Metabolismo de Metais	Cu-64, Fe-55, Fe-56, Fe-59, K-42, Na-24
Volume Fluídico	Br-82, Na-24, S-35, I-125, I-131, H-3
Estudos do Trato Gastrointestinal	O-18, Fe-59, Cs-137, Na-22, Rb-86, K-40, N-15, Cu-64, Cu-67, Tc-99m
Perda Sanguínea	Cr-51
Absorção de Gorduras	I-125, I-131, Co-57, Co-58
Diagnose de Tumores Intraoculares	P-32
Função Renal	I-125, I-131, Rb-86
Mapeamento Renal	Hg-197, Hg-203, Tc-99m
Radioterapia da Leucemia	Bi-206, P-32

## QUADRO 6 1- APLICAÇÕES MÉDICAS DE RADIOISÓTOPOS (CONTINUAÇÃO)

Função Hepática	Au-198, I-125, I-131
Mapeamento Hepático	I-125, I-131, Tc-99m, In-113, Mo-99 , Zn-69m
Função Pulmonar	Xe-133
Irradiação Linfática	I-125, I-131
Diagnose da Osteomielite	Ca-47
Diagnose da Doença de Paget	Ca-47
Mapeamento do Pâncreas	Se-75, Tc-99
Radioterapia Peritoneal	Au-198, Y-90, P-32
Anemias Perniciosas	Co-57, Co-58
Radioterapia Pleural	Au-198, Y-90, P-32
Radioterapia de Desordens Tireoideanas	I-131
Função Tireoideana	I-131, I-125
Mapeamento da Tireoide	I-131, Tc-99m
Doença de Wilson	Cu-64

## QUADRO 6 2- APLICAÇÕES INDUSTRIAIS DE RADIOISÓTOPOS

Medição de Espessura	Co-60, Kr-85, Sr-90, Ir-192, Am-241, Tl-204, Y-90, C-14
Medição de Densidade	Co-60, Kr-85, Sr-90, Am-241, Tl-204, Cs-137, Ce-144
Medição de Nível	Co-60, Kr-85, Sr-90, Cs-137
Dispositivos de Registro	Ra-Be, Co-60, Cs-137, Po-210, Am-241
Radiografia	Co-60, Cs-137, Ir-192, Tm-170, Th-228
Tracadores	P-32, S-35, Ca-45, Cr-51, Fe-55, Co-58, Zn-65, Kr-85, Br-82, Au-198, Hg-203, H-3, C-14
Ionização e Produção de Nêutrons	Po-210, Ra-226, Pu-239, Am-241
Medições, Calibres, Ionização, Produção de Raios-X, Tintas Autoluminosas	H-3, Kr-85, Sr-90, Pm-147, Tl-204
Radiografia, Esterilização e Início de Reações Químicas	Co-60, Cs-137, Ir-192

## QUADRO 6 3- APLICAÇÃO DE RADIOISÓTOPOS NA AGRICULTURA

Solos, Nutrição de Plantas e Animais	N-15, P-32, K-42, S-35, C-14 , Na-24, Ca-45, Fe-55, Fe-59 , Co-60, Zn-65, Sr-85, Sr-90 , I-131, Cs-137, Cl-36
Distribuição de Fertilizantes	N-15, P-32
Movimento Hídrico	H-3, Cl-36, Cl-38
Determinação de Mistura de Solos	Ra-Be, Po-Be, Am-Be (nêutrons)
Determinação de Volume de Água em Solos e Animais	Na-22, Na-24
Nutrição e Patologia Animal	Ca-45, Cr-51, Fe-59, Y-91, I-131, Cs-137
Entomologia	H-3, C-14, Na-22, Na-24, P-32, S-35, Cl-36, K-42, Ca-45, Mn-54, Mn-52, Fe-55, Fe-59, Mn-56 , Sr-90, Cs-137, Ce-144, Au-198
Controle de Ervas Daninhas	C-14, S-35, As-74, As-76

## QUADRO 6 4 - APLICAÇÕES DE RADIOISÓTOPOS EM HIDROLOGIA

ÁGUAS SUPERFICIAIS

Medição de Vazões	H-3, Na-24, Cr-51, Br-82, I-131, Au-198
Efluentes de Depósitos de Rejeitos	I-131, Br-82
Transporte de Sedimentos	Na-24, Si-31, P-32, Cr-51, Co-60, Zn-65 , As-76, Ce-139, Ce-144, Ir-192, Au-198

ÁGUAS SUBTERRÂNEAS

Mistura percentual de solos	Fontes de nêutrons , Ra-Be, Po-Be
Estudos de mistura de solos	H-2, H-3, C-14, O-18
Mapeamento de Águas Subterrâneas	H-2, H-3, C-14, O-18, S-35, Cr-51, Co-58 , Co-60, Br-82
Velocidade de Águas Subterrâneas	H-3, Cr-51, Co-60, Br-82, I-131, Au-198
Direção de Lencóis Subterrâneos	Ag-110m, I-131
Marcação Radioativa	H-3, C-14, Si-32

## QUADRO 6 5 - MEIA VIDA APROXIMADA DE DIVERSOS RADIOISÓTOPOS

Ag-105	40 d	Ce-141	32,5d	H-3	12,26 a	Ni-57	36 h
Ag-111	7,5 d	Ce-144	285 d	Hg-197	23 h	Ni-65	2,56 h
Am-241	433 a	Cf-252	2,65a	Hg-203	47 d	P -32	14,2 d
Ar-37	35 d	Co-58	71 d	I -125	60 d	Ra-226	1600 a
As-76	26,5h	Co-60	5,25a	I- 131	8,04 d	Rb-86	18,7 d
Au-195	180 d	Cr-51	27,8 d	Ir-192	74,4 d	S-35	87 d
Au-198	2,69d	Cs-134	2,2 a	K -42	12,5 h	Sr-85	64 d
Ba-131	11,5d	Cs-137	30 a	Kr-85	10,6 a	Sr-90	28 a
Ba-140	12,8d	Cu-64	12,8 h	La-140	40,2 h		
Bi-210	5 d	Eu-154	16 a	Mg-28	21,4 h	Tc-97	91 d
Br-82	36 h	Eu-155	1,7 a	Mn-52	5,7 d	Te-125	60 d
C -14	5568a	F -18	1,87h	Mn-54	291 d	Tl-204	2,7 a
Ca-45	153d	Fe-55	2,94a	Mn-56	2,58 h	Y-90	64,4h
Cd-115	43 d	Fe-59	45 d	Na-24	15 h	Zn-65	245 d



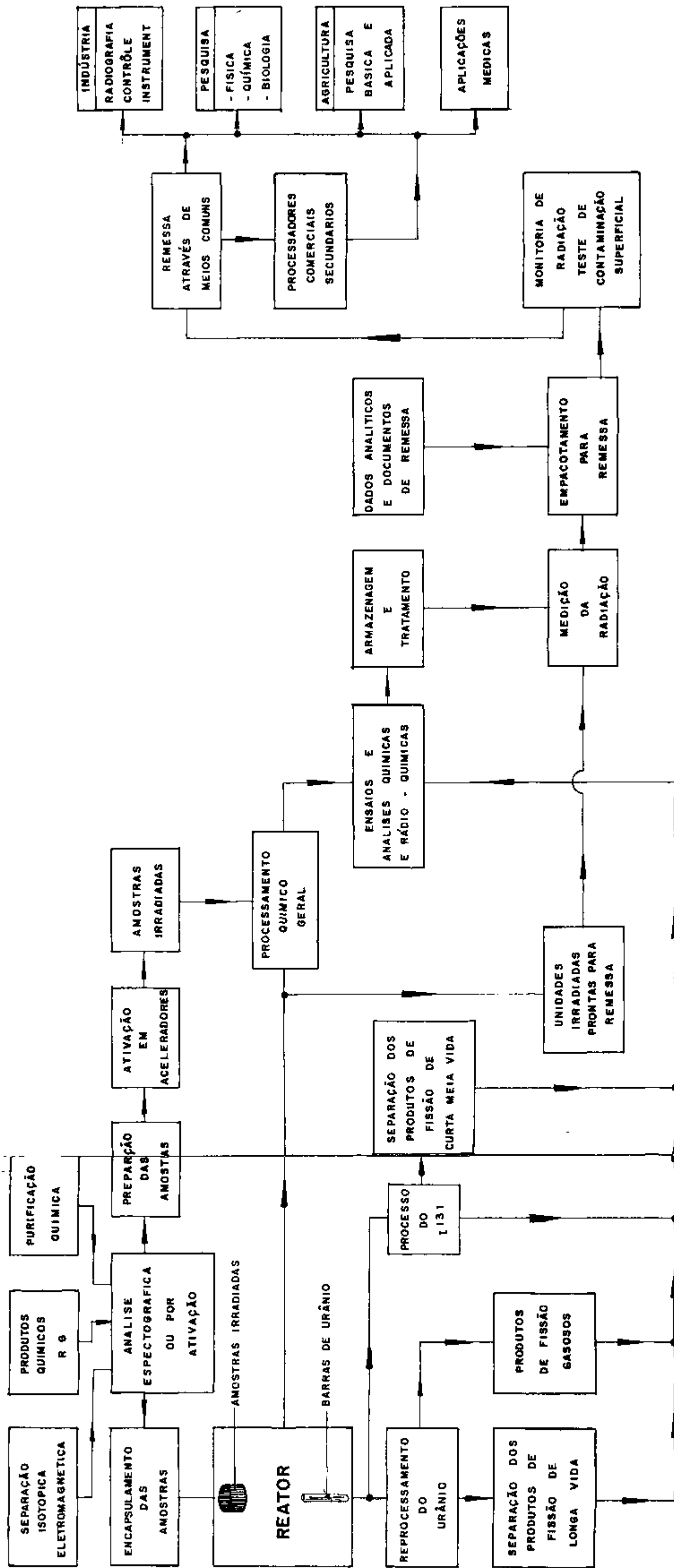


Fig. 6.1 - ESQUEMA DE PRODUÇÃO DE ISÓTOPOS RADIOATIVOS

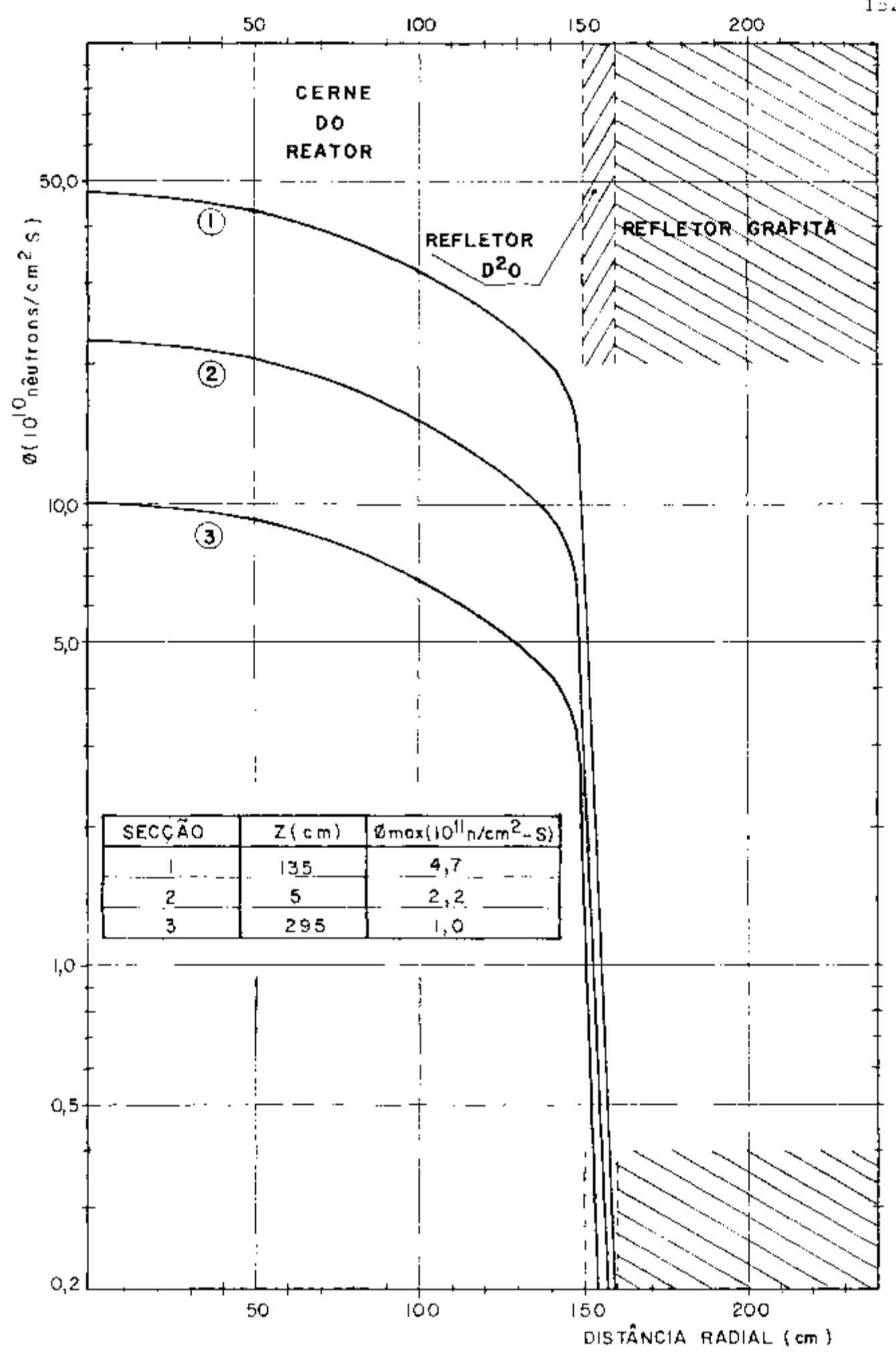


FIGURA 6 2 - DISTRIBUIÇÃO RADIAL DO FLUXO NEUTRÔNICO RÁPIDO (1,05 a 10 MeV)

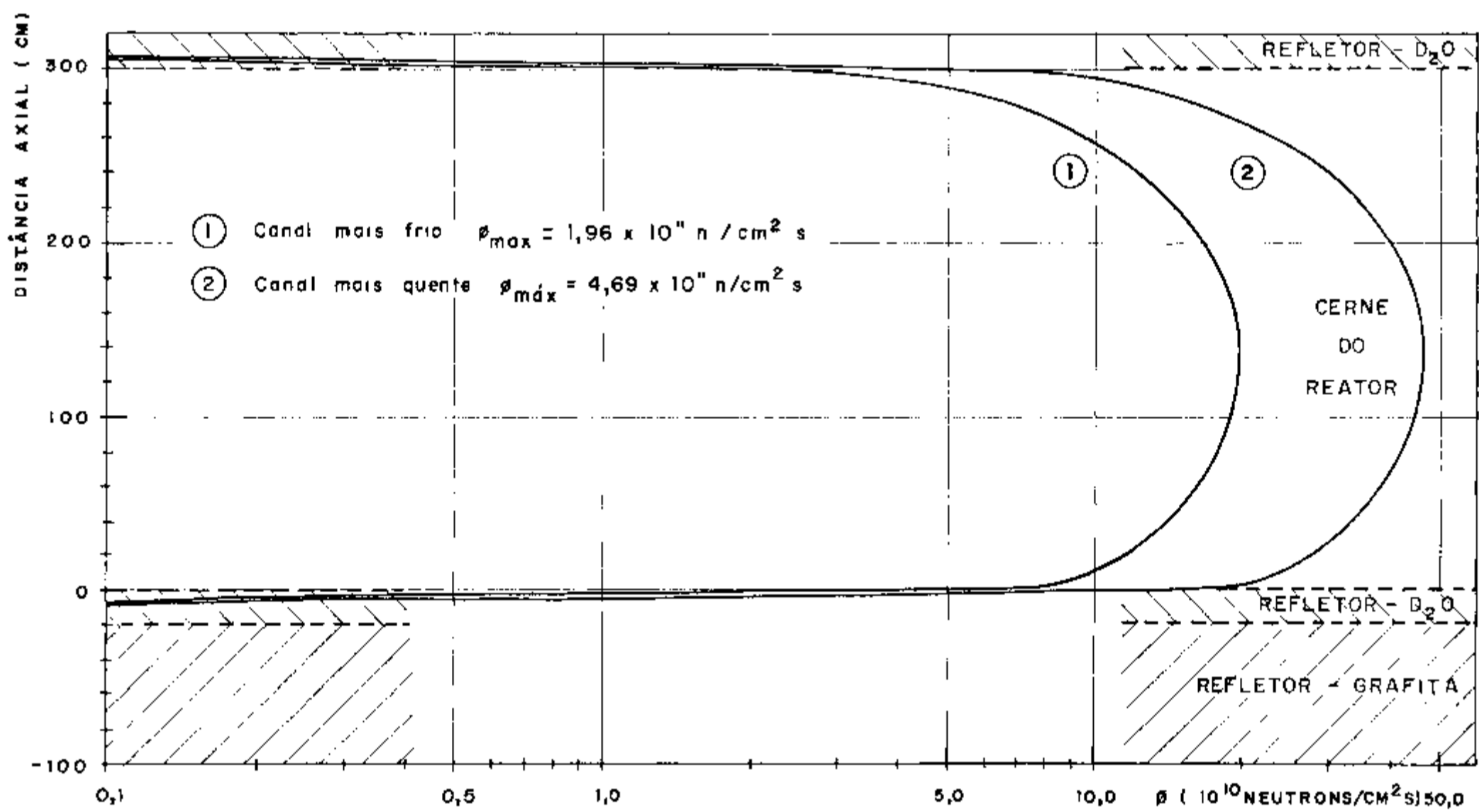


Figura 6.3 - Distribuição axial do fluxo neutrônico rápido (1,05 a 10 MeV)

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 ARTANDI, C & WINKLE JR, W V Comparison of electron-beam and gamma irradiation plants Isotopes Radiat Technol, 2(4) 321-8, 1965
- 2 AYERS, A L et alii Production of high specific activity radioisotopes In UNITED NATIONS Proceedings of the second international conference on the peaceful uses of atomic energy held in Geneva, 1 September - 13 September 1958, v 20 Isotopes in research Geneva, 1958 p 27-37
- 3 BALTAZAR, O Definições preliminares dos parâmetros do projeto de um reator nuclear experimental de potência, utilizando urânio natural e grafita e refrigerado por gás hélio São Paulo, 1976 (Dissertação de mestrado)
- 4 BECKER, E W Heavy water production Vienna, International Atomic Energy Agency, 1962 (Review series, 21)
- 5 BENEDICT, M et alii Nuclear chemical engineering New York, McGraw-Hill, 1957
- 6 BUTLER, J P et alii Novel catalysts for isotopic exchange between hydrogen and liquid water In RAE, H K, ed Separation of hydrogen isotopes Washington, D C, ACS, 1978 p 93-109 (ACS Symposium series, 68)
- 7 COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR Relatório anual 1971/1980 Rio de Janeiro, /s d /
- 8 COORDENAÇÃO DO SISTEMA DE INFORMAÇÕES ECONOMICO-FISCAIS Comércio exterior do Brasil importação 1972/1980 Brasília, /s d /
- 9 DAVIDSON, G D Bruce heavy water plant performance In RAE, H K, ed Separation of hydrogen isotopes Washington, D C, ACS, 1978 p 27-39 (ACS Symposium series, 68)

- 10 DESCRIPTION and hazard of JRR-3 Tokyo, Japan Atomic Energy Research Institute, 1968 (JAERI 6004)
- 11 DESHPANDE, P G & GAMI, D C Design of an electrolytic plant for the concentration of heavy water In UNITED NATIONS Proceedings of the second international conference on the peaceful uses of atomic energy held in Geneva, 1 September 13 September 1958, v 4 Production of nuclear materials and isotopes Geneva, 1958 p 568-75
- 12 DIEHL, J F Preservation of food Radiat Phys Chem, 14(1/2) 117-126, 1979
- 13 DIEHL, J F Preservation of food Radiat Phys Chem, 9(1/3) 193-206, 1977
- 14 DIRECTORY of nuclear reactors, vol 2 Research, test and experimental reactors Vienna, International Atomic Energy Agency, 1959
- 15 DIRECTORY of nuclear reactors, vol 3 Research, test and experimental reactors Vienna, International Atomic Energy Agency, 1960
- 16 DIRECTORY of nuclear reactors, vol 5 Research, test and experimental reactors Vienna, International Atomic Energy Agency, 1964
- 17 DIRECTORY of nuclear reactors, vol 6 Research, test and experimental reactors Vienna, International Atomic Energy Agency, 1966
- 18 DIRECTORY of nuclear reactors, vol 8 Research, test and experimental reactors Vienna, International Atomic Energy Agency, 1970
- 19 DIRECTORY of nuclear reactors, vol 10 Power and research reactors Vienna, International Atomic Energy Agency, 1976

- 20 EASTWOOD, W S et alii Cobalt-60 production in the U K Atomic Energy Authority In UNITED NATIONS Proceedings of the second international conference on the peaceful uses of atomic energy held in Geneva, 1 September - 13 September 1958, v 20 Isotopes in research Geneva, 1958 p 19-26
- 21 EL-WAKIL, M M Nuclear heat transport London, International Text Book, 1971
- 22 FOWLER, T B et alii Nuclear reactor core analysis code CITATION Oak Ridge, Tenn , Oak Ridge National Laboratory, 1971 (ORNL-TM-2496, Rev 2)
- 23 FROHNSDORFF, R S M Sterilisation of medical products in Europe Radiat Phys Chem , 17(2) 95-106, 1981
- 24 GAMI, D C & RAPIAL, A S Analysis of operating experience of hydrogen distillation plant In UNITED NATIONS Proceedings of the third international conference on the peaceful uses of atomic energy held in Geneva 31 August - 9 September 1964, v 12 Nuclear fuels - III Raw materials New York, 1965 p 421-9
- 25 \_\_\_\_\_ et alii Production of heavy water in India In UNITED NATIONS Proceedings of the second international conference on the peaceful uses of atomic energy held in Geneva, 1 September - 13 September 1958, v 4 Production of nuclear materials and isotopes Geneva, 1958 p 534-9
- 26 GARDNER, R P & ELY JR , R L Radioisotopes measurement applications in engineering New York, Reinhold, 1967
- 27 GLASSTONE, S & SESONSKE, A Nuclear reactor engineering Princeton, N J , Van Nostrand, 1967
- 28 HAMMERLI, M et alii Combined electrolysis catalytic exchange (CECE) process for hydrogen isotope separation In RAE, H K , ed Separation of hydrogen isotopes Washington, D C , ACS, 1978 p 110-125 (ACS Symposium series,68)

- 29 HARROD, R Gamma irradiation facilities Radiat Phys Chem,  
9(1/3) 91-118, 1977
- 30 HOLDEN, A N Physical metallurgy of uranium Reading, Mass ,  
Addison-Wesley, 1958
- 31 HOLTSLANDER, W J & LOCKERBY, W E Hydrogen-amine pro -  
cess for heavy water production In RAE, H K ed Se-  
paration of hydrogen isotopes Washington, D C , ACS ,  
1978 p 40-52 (ACS Symposium series, 68)
- 32 HURST, D G & WARD, A G Canadian research reactors Prog  
nucl. Energy Ser 2 Reactors, 1 1-48, 1956
- 33 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY Industrial radioisoto-  
pe economics Vienna, 1965 (Technical reports series,  
40)
- 34 Irradiation facilities for research reactors  
proceedings of the symposium on held in Teheran, 6-10  
November 1972 Vienna, 1973 (Proceedings series, STI/  
PUB/316)
- 35 Radioisotope production and quality control  
Vienna, 1971 (Technical reports series, 128)
- 36 INTERNATIONAL Directory of radioisotopes 2 ed Vienna ,  
International Atomic Energy Agency, 1962 (STI/PUB/45)
- 37 KAUFMANN, A R Nuclear reactor fuel elements New York,  
Interscience, 1962
- 38 KENNA, B T & VAN DOMELEN, B H Neutron activation re-  
lationship of sample mass to self-shielding factor Int  
J Appl Radiat Isotopes, 17 47-50, 1966
- 39 KREITH, F Princípios de transmissão de calor São Paulo,  
Blücher, 1969
- 40 LAMARSCH, J R Introduction to nuclear engineering Reading,  
Mass , Addison-Wesley, 1977

- 41 LAMARSCH, J R Introduction to nuclear reactor theory Reading, Mass , Addison-Wesley, 1966
- 42 LEWIS, W B Isotope production how to choose irradiation time Nucleonics, 12(10) 30-3, Oct 1954
- 43 LYMAN, T ed Metals handbook, v 1 Properties and selection of metals 8 ed Ohio, American Society for Metals, 1964
- 44 McDONELL, W R & STURCKEN, E F Development of high performance uranium metal fuels for Savannah River Reactors Nucl Technol , 26 420-9, Aug 1975
- 45 MACHI, S Industrial application of radiation processing in Japan Radiat Phys Chem , 14(1/2) 155-170, 1979
- 46 MAEDA, S & ENOMOTO, S Development of high intensity <sup>192</sup>Ir gamma-ray radiographic source Int J appl Radiat Isotopes, 27 447-51, Aug 1976
- 47 MAHER, W J The application of electron beam equipment for sterilization of medical devices Radiat Phys Chem 15(1) 99-106, 1980
- 48 MASEFIELD, J et alii Cobalt-60 contract gamma sterilization of medical devices Radiat Phys Chem , 15(1) 91-97, 1980
- 49 MASEFIELD, J et alii Major considerations governing the adoption of Cobalt-60 sterilization Radiat Phys Chem , 14(3/6) 277-284, 1979
- 50 MORRIS JR , E T SCHULTZ, M A Production of radioisotopes in Testing reactors In UNITED NATIONS Proceedings of the second international conference on the peaceful uses of atomic energy held in Geneva, 1 September- 13 September 1958, v 20 Isotopes in research Geneva, 1958 p 14-8

INSTITUTO DE FÍSICA

E NUCLEARES



- 51 MORRISON, J A et alii The management of heavy water for research and power reactors In UNITED NATIONS Proceedings of the third international conference on the peaceful uses of atomic energy held in Geneva 31 August- 9 September 1964, v 12 Nuclear fuels - III Raw materials New York, 1965 p 373-9
- 52 NITSCHKE, E et alii OHDE process for the recovery of heavy water from synthesis gas In RAE, H K , ed Separation of hydrogen isotopes Washington, D C , ACS , 1978 p 77-92 (ACS Symposium series , 68)
- 53 OGBADU, G H et alii Effect of  $\gamma$ -irradiation in the keeping quality of nigerian onion cultivars Radiat Phys Chem , 17(4) 189-194, 1981
- 54 OTERO, J L & GISPERT, M Estudios sobre la obtención de agua pesada I-Descripción de la instalación JEN-EIA de Sabiñanigo Energía nucl (Madrid), (32) 4-11, oct -dic 1964
- 55 \_\_\_\_\_ et alii Estudios sobre la obtención de agua pesada II-Planta piloto de electrolisis y quemadores Energía nucl (Madrid), (34) 90-4, mar -abr 1965
- 56 PINAJIAN, J J et alii Isotope production and development. Isotopes Radiat Technol , 1(2) 130-159, 1964
- 57 PLATA BEDMAR, A Isotopos en hidrologia Madrid, Allambra, 1972
- 58 RAE, H K Selecting heavy water processes In \_\_\_\_\_ , ed Separation of hydrogen isotopes Washington, D C , ACS, 1978 p 1-26 (ACS Symposium series, 68)
- 59 ROTH, E et alii Production of heavy water in France In UNITED NATIONS Proceedings of the second international conference on the peaceful uses of atomic energy, held in Geneva, 1 September- 13 September 1958, v 4 Production of nuclear materials and isotopes Geneva, 1958 p 499-521

- 60 RUPP, A F Large-scale production of radioisotopes In UNITED NATIONS Proceedings of the international conference on the peaceful uses of atomic energy held in Geneva, 8 August - 20 August 1955, v 14 General aspects of the use of radioactive isotopes dosimetry New York, 1956 p 68-84
- 61 SAGE, R D et alii The Canada-India reactor In UNITED NATIONS Proceedings of the second international conference on the peaceful uses of atomic energy held in Geneva, 1 September - 13 September 1958, v 10 Research reactors Geneva, 1958 p 157-73
- 62 SAHAGUN, J M Técnicas isotópicas útiles en los países latinoamericanos Puerto Rico, Organización de los Estados Americanos, 1973
- 63 SCHULER, R E Radiation sources - E B Radiat Phys Chem , 14(1/2) 171-184, 1979
- 64 SILVA, C P G et alii Radioisótopos primários, moléculas marcadas e fontes radioativas Preparação e consumo no Brasil Estado atual e perspectivas São Paulo, 1974 / Mimeografado/
- 65 SILVA, G A Produção nacional de fertilizantes em 1976 Rev bras Engenh Quim , 2(1) 61-9, mar 1978
- 66 SILVERMANN, J , ed Advances in radiation processing Radiat Phys Chem , 14(1/6) , 1979
- 67 SILVERMANN, J & VAN DYKEN, A R , ed Radiation processing Radiat Phys Chem , 9(1/6), 1977
- 68 SUICH, J E & HONECK, H C The HAMMER system heterogeneous analysis by multigroup methods exponentials and reactors Aiken, S C , Du Pont de Nemours, 1967 (DP-1064)

- 69 VILLANI, S Separazione degli isotopi Roma, Comitato Nazionale de Energia Nucleare, 1974
- 70 WIRTZ, K The Karlsruhe research reactor FR-2 In UNITED NATIONS Proceedings of the second international conference on the peaceful uses of atomic energy held in Geneva, 1 September - 13 September 1958, v 10 Research reactors Geneva, 1958 p 140-56

E R R A T A

<u>Página</u>	<u>Especificação</u>	<u>Onde se Lê</u>	<u>Lêa-se</u>
39	item 2 3 3 2	$\alpha = \left[ \frac{x(1-x)}{x/(1-x)} \right]$	$\alpha = \left[ \frac{x/(1-x)}{x/(1-x)} \right]$
71	final do item 2 5	N-17	N-16
103	item 3 8 5	$q^I(z) = q_H^I(z) \frac{A_P}{A_C} \quad (3.6)$	$q^{III}(z) = q_H^{III}(z) \frac{A_P}{A_C}$  $q^I(z) = q_H^I(z) \quad (3.6)$
110	item 3 9	$\varepsilon/D_e \cong 0,0004$ $f \cong 3,7 \times 10^{-2}$	$\varepsilon/D_e \cong 0,004$ $f \cong 3,1 \times 10^{-2}$
126	curva superior	①	③